

BM

PCT

INTERNATIONALER RECHERCHENBERICHT

(Artikel 18 sowie Regeln 43 und 44 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts D-9731	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übermittlung des internationalen Recherchenberichts (Formblatt PCT/ISA/220) sowie, soweit zutreffend, nachstehender Punkt 5	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP 99/ 01036	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 17/02/1999	(Frühestes) Prioritätsdatum (Tag/Monat/Jahr) 18/02/1998
Anmelder DEGGENDORFER WERFT UND EISENBAU GMBH et al.		

Dieser internationale Recherchenbericht wurde von der Internationalen Recherchenbehörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 18 übermittelt. Eine Kopie wird dem Internationalen Büro übermittelt.

Dieser internationale Recherchenbericht umfaßt insgesamt 3 Blätter.

☒ Darüber hinaus liegt ihm jeweils eine Kopie der in diesem Bericht genannten Unterlagen zum Stand der Technik bei.

1. Grundlage des Berichts

a. Hinsichtlich der **Sprache** ist die internationale Recherche auf der Grundlage der internationalen Anmeldung in der Sprache durchgeführt worden, in der sie eingereicht wurde, sofern unter diesem Punkt nichts anderes angegeben ist.

☐ Die internationale Recherche ist auf der Grundlage einer bei der Behörde eingereichten Übersetzung der internationalen Anmeldung (Regel 23.1 b)) durchgeführt worden.

b. Hinsichtlich der in der internationalen Anmeldung offenbarten **Nucleotid- und/oder Aminosäuresequenz** ist die internationale Recherche auf der Grundlage des Sequenzprotokolls durchgeführt worden, das

☐ in der internationalen Anmeldung in schriftlicher Form enthalten ist.

☐ zusammen mit der internationalen Anmeldung in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in schriftlicher Form eingereicht worden ist.

☐ bei der Behörde nachträglich in computerlesbarer Form eingereicht worden ist.

☐ Die Erklärung, daß das nachträglich eingereichte schriftliche Sequenzprotokoll nicht über den Offenbarungsgehalt der internationalen Anmeldung im Anmeldezeitpunkt hinausgeht, wurde vorgelegt.

☐ Die Erklärung, daß die in computerlesbarer Form erfaßten Informationen dem schriftlichen Sequenzprotokoll entsprechen, wurde vorgelegt.

2. ☐ Bestimmte Ansprüche haben sich als nicht recherchierbar erwiesen (siehe Feld I).

3. ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung (siehe Feld II).

4. Hinsichtlich der **Bezeichnung der Erfindung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut von der Behörde wie folgt festgesetzt:

5. Hinsichtlich der **Zusammenfassung**

☒ wird der vom Anmelder eingereichte Wortlaut genehmigt.

☐ wurde der Wortlaut nach Regel 38.2b) in der in Feld III angegebenen Fassung von der Behörde festgesetzt. Der Anmelder kann der Behörde innerhalb eines Monats nach dem Datum der Absendung dieses internationalen Recherchenberichts eine Stellungnahme vorlegen.

6. Folgende Abbildung der **Zeichnungen** ist mit der Zusammenfassung zu veröffentlichen: Abb. Nr. 1

☒ wie vom Anmelder vorgeschlagen

☐ weil der Anmelder selbst keine Abbildung vorgeschlagen hat.

☐ weil diese Abbildung die Erfindung besser kennzeichnet.

☐ keine der Abb.

A. KLASSIFIZIERUNG DES ANMELDUNGSGEGENSTANDES
IPK 6 B01J8/06

Nach der Internationalen Patentklassifikation (IPK) oder nach der nationalen Klassifikation und der IPK

B. RECHERCHIERTE GEBIETE

Recherchierter Mindestprüfstoff (Klassifikationssystem und Klassifikationssymbole)
IPK 6 B01J

Recherchierte aber nicht zum Mindestprüfstoff gehörende Veröffentlichungen, soweit diese unter die recherchierten Gebiete fallen

Während der internationalen Recherche konsultierte elektronische Datenbank (Name der Datenbank und evtl. verwendete Suchbegriffe)

C. ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
X	US 2 986 454 A (JEWETT JOSEPH E.) 30. Mai 1961 (1961-05-30)	1,3,8-12
Y		2,3,6,7, 18
A	das ganze Dokument	16,17
X	US 4 127 389 A (HACKEMESSER LARRY G ET AL) 28. November 1978 (1978-11-28)	1,2
A	Spalte 3, Zeile 56 - Spalte 4, Zeile 4 Ansprüche 1,6,7,9; Abbildung 1	17
Y	GB 776 416 A (POWER-GAS CORPORATION LTD) 5. Juni 1957 (1957-06-05)	2,6
A	Seite 3, linke Spalte, Zeile 29 - Zeile 31 Ansprüche 1-13; Abbildungen 1,2	7

	-/--	

☒ Weitere Veröffentlichungen sind der Fortsetzung von Feld C zu entnehmen

☒ Siehe Anhang Patentfamilie

* Besondere Kategorien von angegebenen Veröffentlichungen :

- "A" Veröffentlichung, die den allgemeinen Stand der Technik definiert, aber nicht als besonders bedeutsam anzusehen ist
- "E" älteres Dokument, das jedoch erst am oder nach dem internationalen Anmeldedatum veröffentlicht worden ist
- "L" Veröffentlichung, die geeignet ist, einen Prioritätsanspruch zweifelhaft erscheinen zu lassen, oder durch die das Veröffentlichungsdatum einer anderen im Recherchenbericht genannten Veröffentlichung belegt werden soll oder die aus einem anderen besonderen Grund angegeben ist (wie ausgeführt)
- "O" Veröffentlichung, die sich auf eine mündliche Offenbarung, eine Benutzung, eine Ausstellung oder andere Maßnahmen bezieht
- "P" Veröffentlichung, die vor dem internationalen Anmeldedatum, aber nach dem beanspruchten Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist

"T" Spätere Veröffentlichung, die nach dem internationalen Anmeldedatum oder dem Prioritätsdatum veröffentlicht worden ist und mit der Anmeldung nicht kollidiert, sondern nur zum Verständnis des der Erfindung zugrundeliegenden Prinzips oder der ihr zugrundeliegenden Theorie angegeben ist

"X" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann allein aufgrund dieser Veröffentlichung nicht als neu oder auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden

"Y" Veröffentlichung von besonderer Bedeutung; die beanspruchte Erfindung kann nicht als auf erfinderscher Tätigkeit beruhend betrachtet werden, wenn die Veröffentlichung mit einer oder mehreren anderen Veröffentlichungen dieser Kategorie in Verbindung gebracht wird und diese Verbindung für einen Fachmann naheliegend ist

"&" Veröffentlichung, die Mitglied derselben Patentfamilie ist

Datum des Abschlusses der internationalen Recherche

16. Juli 1999

Absendedatum des internationalen Recherchenberichts

27/07/1999

Name und Postanschrift der Internationalen Recherchenbehörde
Europäisches Patentamt, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl,
Fax: (+31-70) 340-3016

Bevollmächtigter Bediensteter

Vlassis, M

C.(Fortsetzung) ALS WESENTLICH ANGESEHENE UNTERLAGEN

Kategorie*	Bezeichnung der Veröffentlichung, soweit erforderlich unter Angabe der in Betracht kommenden Teile	Betr. Anspruch Nr.
Y	<p>US 3 929 421 A (WERGES DARRELL L) 30. Dezember 1975 (1975-12-30) Spalte 6, Zeile 51 - Spalte 7, Zeile 20 Spalte 10, Zeile 21 - Zeile 40 Abbildung 16</p> <p>-----</p>	3,7,18

INTERNATIONALE RECHERCHENBERICHT

Angaben zu Veröffentlichungen, die zur selben Patentfamilie gehören

ationales Aktenzeichen

PCT/EP 99/01036

Im Recherchenbericht angeführtes Patentdokument	Datum der Veröffentlichung	Mitglied(er) der Patentfamilie	Datum der Veröffentlichung
US 2986454 A	30-05-1961	KEINE	
US 4127389 A	28-11-1978	BE 857403 A	01-12-1977
		CA 1090100 A	25-11-1980
		DE 2758131 A	12-10-1978
		FR 2386344 A	03-11-1978
		GB 1578270 A	05-11-1980
		JP 1298664 C	31-01-1986
		JP 53123384 A	27-10-1978
		JP 60023854 B	10-06-1985
		NL 7706217 A	06-10-1978
GB 776416 A		KEINE	
US 3929421 A	30-12-1975	CA 1057482 A	03-07-1979
		US 4067902 A	10-01-1978



1
2
3

4
5
6

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

ational Application No

PCT/EP 99/01036

A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER
IPC 6 B01J8/06

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)
IPC 6 B01J

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practical, search terms used)

C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	US 2 986 454 A (JEWETT JOSEPH E.) 30 May 1961 (1961-05-30)	1,3,8-12
Y		2,3,6,7, 18
A	the whole document	16,17
X	US 4 127 389 A (HACKEMESSER LARRY G ET AL) 28 November 1978 (1978-11-28)	1,2
A	column 3, line 56 - column 4, line 4 claims 1,6,7,9; figure 1	17
Y	GB 776 416 A (POWER-GAS CORPORATION LTD) 5 June 1957 (1957-06-05)	2,6
A	page 3, left-hand column, line 29 - line 31 claims 1-13; figures 1,2	7
	--- -/--	

☒ Further documents are listed in the continuation of box C.

☒ Patent family members are listed in annex.

*** Special categories of cited documents:**

- "A" document defining the general state of the art which is not considered to be of particular relevance
- "E" earlier document but published on or after the international filing date
- "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is cited to establish the publication date of another citation or other special reason (as specified)
- "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other means
- "P" document published prior to the international filing date but later than the priority date claimed

- "T" later document published after the international filing date or priority date and not in conflict with the application but cited to understand the principle or theory underlying the invention
- "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered novel or cannot be considered to involve an inventive step when the document is taken alone
- "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be considered to involve an inventive step when the document is combined with one or more other such documents, such combination being obvious to a person skilled in the art.
- "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search

16 July 1999

Date of mailing of the international search report

27/07/1999

Name and mailing address of the ISA

European Patent Office, P.B. 5818 Patentlaan 2
NL - 2280 HV Rijswijk
Tel. (+31-70) 340-2040, Tx. 31 651 epo nl.
Fax: (+31-70) 340-3016

Authorized officer

Vlassis, M

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International Application No

PCT/EP 99/01036

C.(Continuation) DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category *	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
Y	<p>US 3 929 421 A (WERGES DARRELL L) 30 December 1975 (1975-12-30) column 6, line 51 - column 7, line 20 column 10, line 21 - line 40 figure 16</p> <p>-----</p>	3,7,18

INTERNATIONAL SEARCH REPORT

Information on patent family members

International Application No

PCT/EP 99/01036

Patent document cited in search report		Publication date	Patent family member(s)	Publication date
US 2986454	A	30-05-1961	NONE	
US 4127389	A	28-11-1978	BE 857403 A	01-12-1977
			CA 1090100 A	25-11-1980
			DE 2758131 A	12-10-1978
			FR 2386344 A	03-11-1978
			GB 1578270 A	05-11-1980
			JP 1298664 C	31-01-1986
			JP 53123384 A	27-10-1978
			JP 60023854 B	10-06-1985
			NL 7706217 A	06-10-1978
GB 776416	A		NONE	
US 3929421	A	30-12-1975	CA 1057482 A	03-07-1979
			US 4067902 A	10-01-1978





TENT COOPERATION TRE Y

PCT

PCT

NOTIFICATION OF ELECTION

(PCT Rule 61.2)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Assistant Commissioner for Patents
United States Patent and Trademark
Office
Box PCT
Washington, D.C.20231
ÉTATS-UNIS D'AMÉRIQUE

in its capacity as elected Office

Date of mailing (day/month/year) 16 November 1999 (16.11.99)	
International application No. PCT/EP99/01036	Applicant's or agent's file reference D-9731
International filing date (day/month/year) 17 February 1999 (17.02.99)	Priority date (day/month/year) 18 February 1998 (18.02.98)
Applicant GÜTLHUBER, Friedrich	

1. The designated Office is hereby notified of its election made:



in the demand filed with the International Preliminary Examining Authority on:

14 September 1999 (14.09.99)



in a notice effecting later election filed with the International Bureau on:

2. The election ☒ was

was not

made before the expiration of 19 months from the priority date or, where Rule 32 applies, within the time limit under Rule 32.2(b).

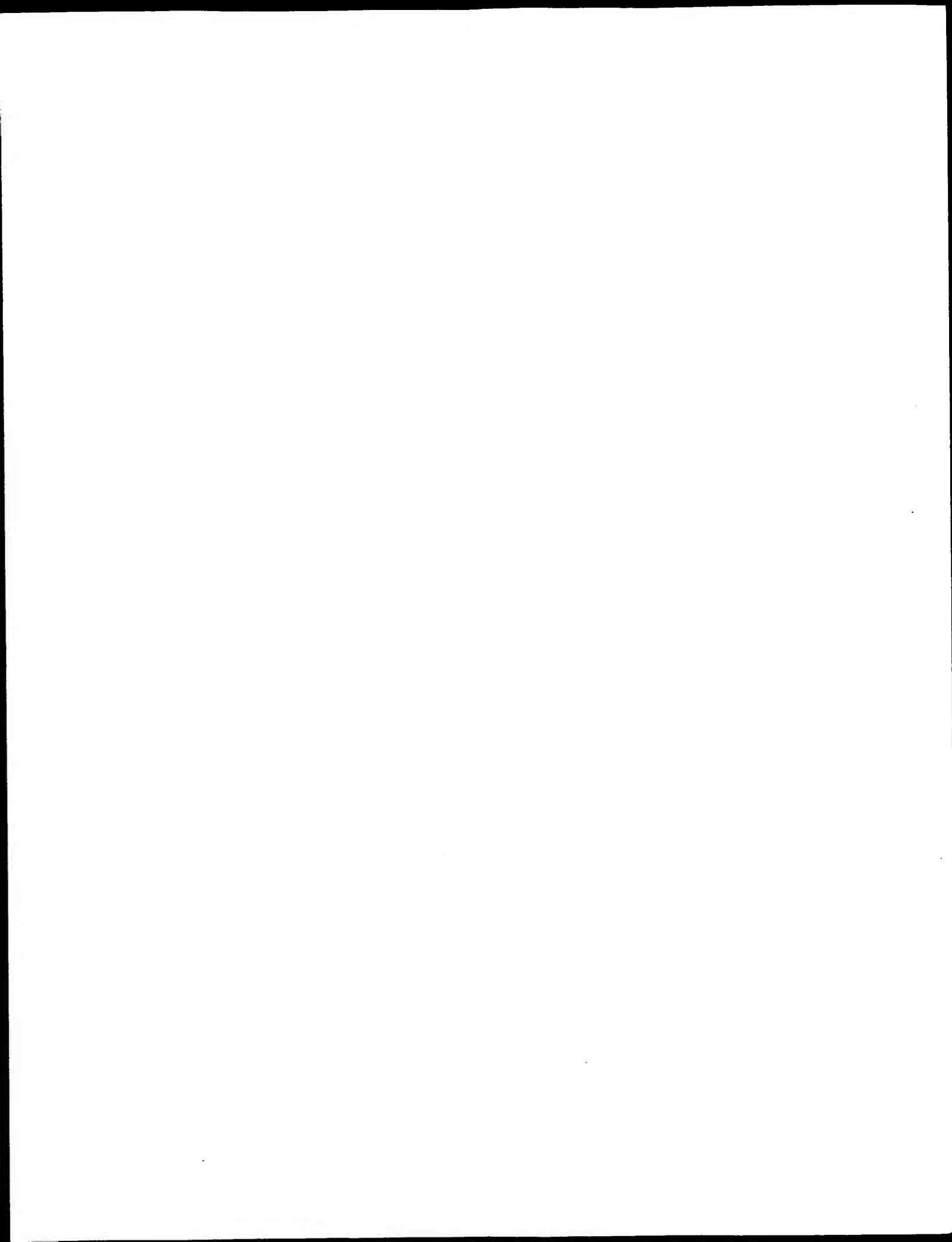
The International Bureau of WIPO
34, chemin des Colombettes
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

R. E. Stoffel

Telephone No.: (41-22) 338.83.38



VERTRAG ÜBER INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS

PCT

INTERNATIONALER VORLÄUFIGER PRÜFUNGSBERICHT

(Artikel 36 und Regel 70 PCT)

Aktenzeichen des Anmelders oder Anwalts D-9731	WEITERES VORGEHEN siehe Mitteilung über die Übersendung des internationalen vorläufigen Prüfungsbericht (Formblatt PCT/IPEA/416)	
Internationales Aktenzeichen PCT/EP99/01036	Internationales Anmeldedatum (Tag/Monat/Jahr) 17/02/1999	Prioritätsdatum (Tag/Monat/Tag) 18/02/1998
Internationale Patentklassifikation (IPK) oder nationale Klassifikation und IPK B01J8/06		
Anmelder DEGGENDORFER WERFT UND EISENBAU GMBH et al.		



- Dieser internationale vorläufige Prüfungsbericht wurde von der mit der internationale vorläufigen Prüfung beauftragte Behörde erstellt und wird dem Anmelder gemäß Artikel 36 übermittelt.
- Dieser BERICHT umfaßt insgesamt 4 Blätter einschließlich dieses Deckblatts.

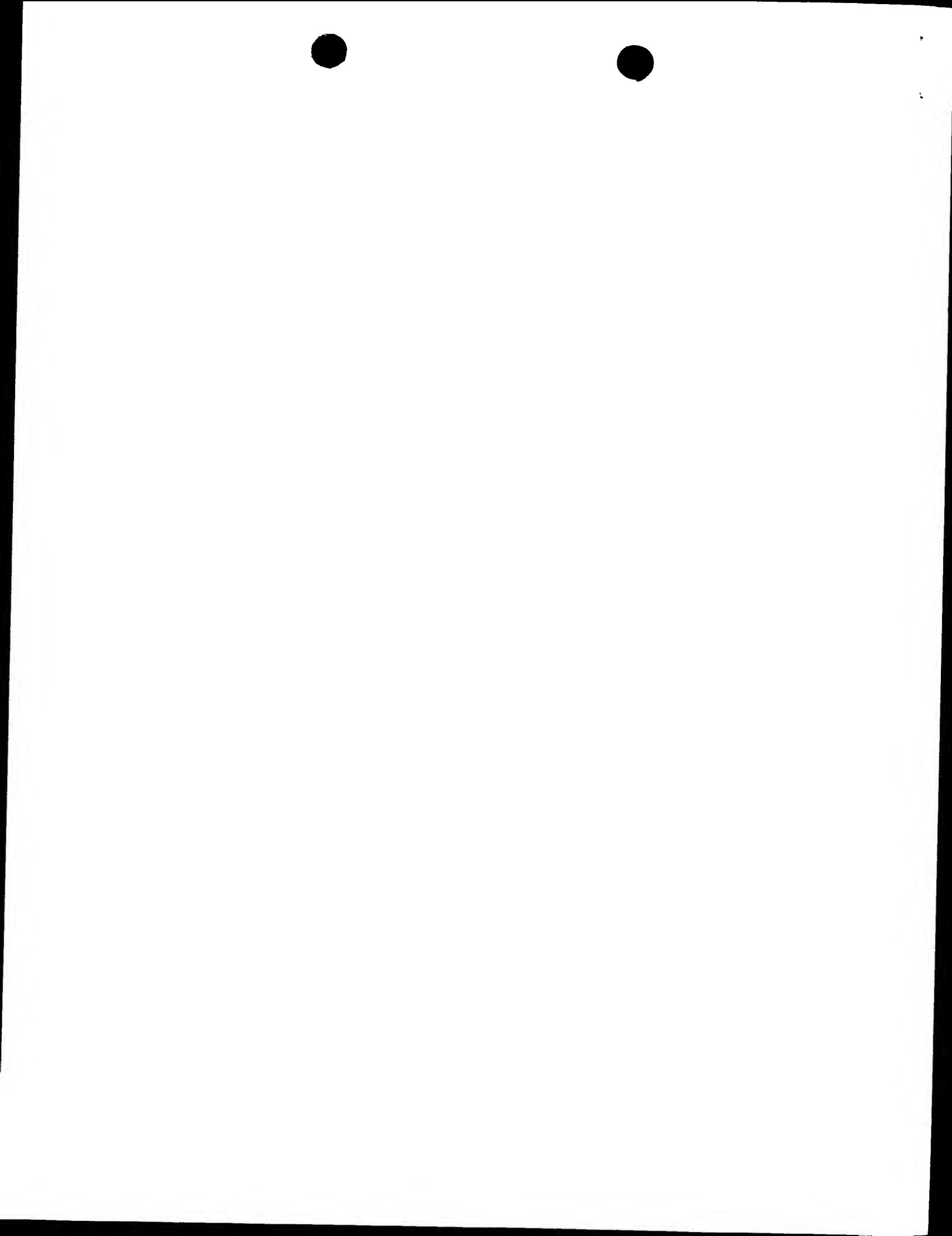
☒ Außerdem liegen dem Bericht ANLAGEN bei; dabei handelt es sich um Blätter mit Beschreibungen, Ansprüchen und/oder Zeichnungen, die geändert wurden und diesem Bericht zugrunde liegen, und/oder Blätter mit vor dieser Behörde vorgenommenen Berichtigungen (siehe Regel 70.16 und Abschnitt 607 der Verwaltungsrichtlinien zum PCT).

 Diese Anlagen umfassen insgesamt 17 Blätter.

- Dieser Bericht enthält Angaben zu folgenden Punkten:

- I ☒ Grundlage des Berichts
- II ☐ Priorität
- III ☐ Keine Erstellung eines Gutachtens über Neuheit, erfinderische Tätigkeit und gewerbliche Anwendbarkeit
- IV ☐ Mangelnde Einheitlichkeit der Erfindung
- V ☒ Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderische Tätigkeit und der gewerbliche Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung
- VI ☐ Bestimmte angeführte Unterlagen
- VII ☐ Bestimmte Mängel der internationalen Anmeldung
- VIII ☐ Bestimmte Bemerkungen zur internationalen Anmeldung

Datum der Einreichung des Antrags 14/09/1999	Datum der Fertigstellung dieses Berichts 19.04.2000
Name und Postanschrift der mit der internationalen vorläufigen Prüfung beauftragten Behörde:  Europäisches Patentamt D-80298 München Tel. +49 89 2399 - 0 Tx: 523656 epmu d Fax: +49 89 2399 - 4465	Bevollmächtigter Bediensteter Gosselin, D Tel. Nr. +49 89 2399 8400 



I. Grundlage des Berichts

1. Dieser Bericht wurde erstellt auf der Grundlage (*Ersatzblätter, die dem Anmeldeamt auf eine Aufforderung nach Artikel 14 hin vorgelegt wurden, gelten im Rahmen dieses Berichts als "ursprünglich eingereicht" und sind ihm nicht beigelegt, weil sie keine Änderungen enthalten.*):

Beschreibung, Seiten:

1,4-9	eingegangen am	14/09/1999	mit Schreiben vom	14/09/1999
2,3,3a	eingegangen am	31/03/2000	mit Schreiben vom	31/03/2000

Patentansprüche, Nr.:

1-9	eingegangen am	31/03/2000	mit Schreiben vom	31/03/2000
-----	----------------	------------	-------------------	------------

Zeichnungen, Blätter:

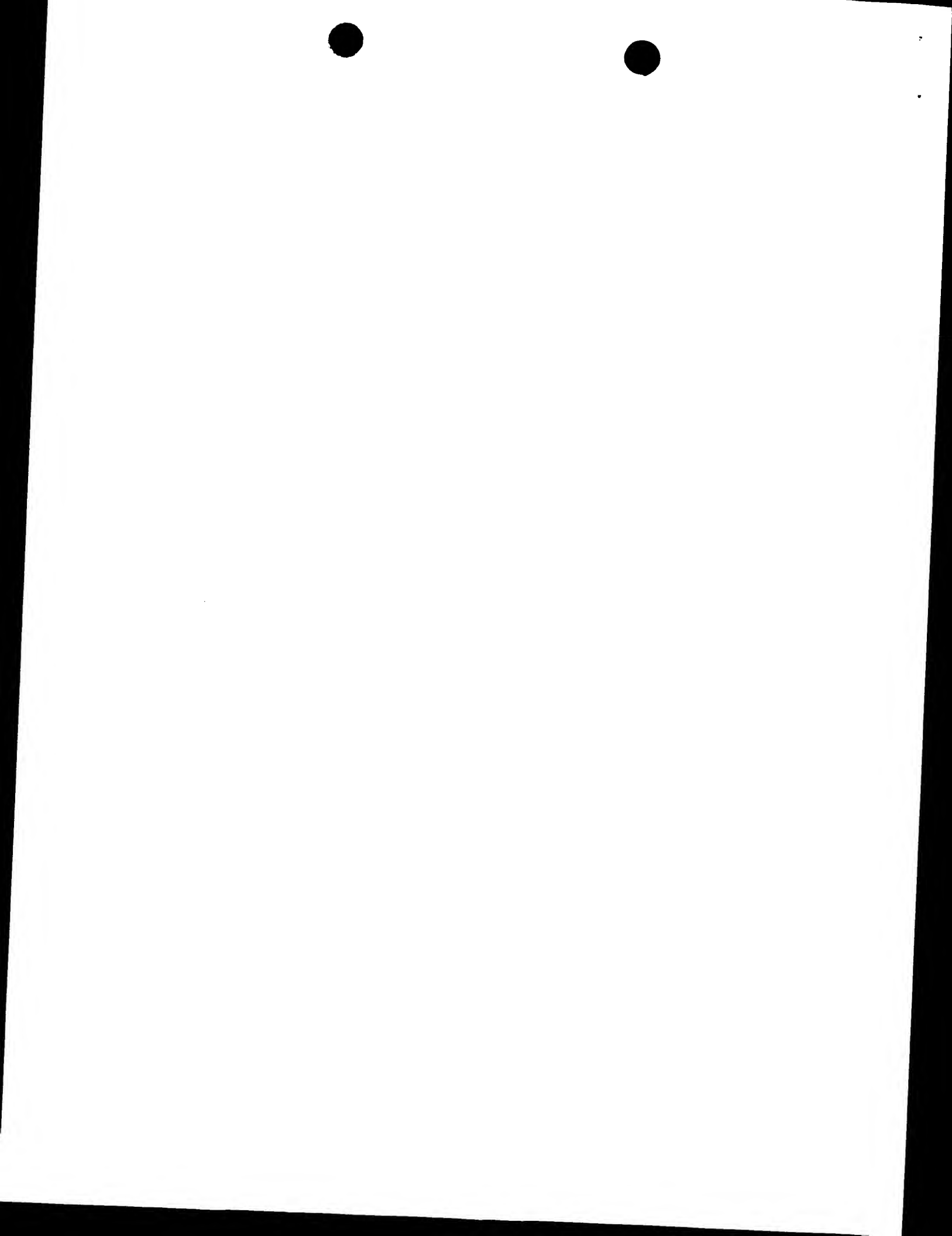
1/3-3/3	eingegangen am	14/09/1999	mit Schreiben vom	14/09/1999
---------	----------------	------------	-------------------	------------

2. Aufgrund der Änderungen sind folgende Unterlagen fortgefallen:

- ☐ Beschreibung, Seiten:
- ☐ Ansprüche, Nr.:
- ☐ Zeichnungen, Blatt:

3. ☐ Dieser Bericht ist ohne Berücksichtigung (von einigen) der Änderungen erstellt worden, da diese aus den angegebenen Gründen nach Auffassung der Behörde über den Offenbarungsgehalt in der ursprünglich eingereichten Fassung hinausgehen (Regel 70.2(c)):

4. Etwaige zusätzliche Bemerkungen:



V. Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Feststellung

Neuheit (N)	Ja: Ansprüche	1-9
	Nein: Ansprüche	
Erfinderische Tätigkeit (ET)	Ja: Ansprüche	1-9
	Nein: Ansprüche	
Gewerbliche Anwendbarkeit (GA)	Ja: Ansprüche	1-9
	Nein: Ansprüche	

2. Unterlagen und Erklärungen

siehe Beiblatt

Zu Punkt V

Begründete Feststellung nach Artikel 35(2) hinsichtlich der Neuheit, der erfinderischen Tätigkeit und der gewerblichen Anwendbarkeit; Unterlagen und Erklärungen zur Stützung dieser Feststellung

1. Es wird auf die folgenden Dokumente verwiesen:

D2: US-A-4 127 389 (HACKEMESSER LARRY G ET AL) 28. November 1978
(1978-11-28)

2. Der Gegenstand des Anspruchs 1 ist gegenüber D2 neu im Sinne des Artikels 33(1) und (2) PCT. Der beanspruchte Röhrenreaktor unterscheidet sich von D2 durch die Merkmale des kennzeichnenden Teils des Anspruchs 1.
3. Der Erfindung liegt die Aufgabe zugrunde, einen Röhrenreaktor, unabhängig von Durchmesser, Rohrzahl, Druckdifferenz und/oder Inhalt, so auszubilden, daß Nebenreaktionen innerhalb der Gaseintrittshaube, wie vor allem Zündung und Deflagrationen, zuverlässig unterbunden sind.

D2 offenbart eine Röhrenreaktorgestaltung, die diese Aufgabe lösen kann, aber nur im Fall eines leichten Aufbaus des Reaktors.

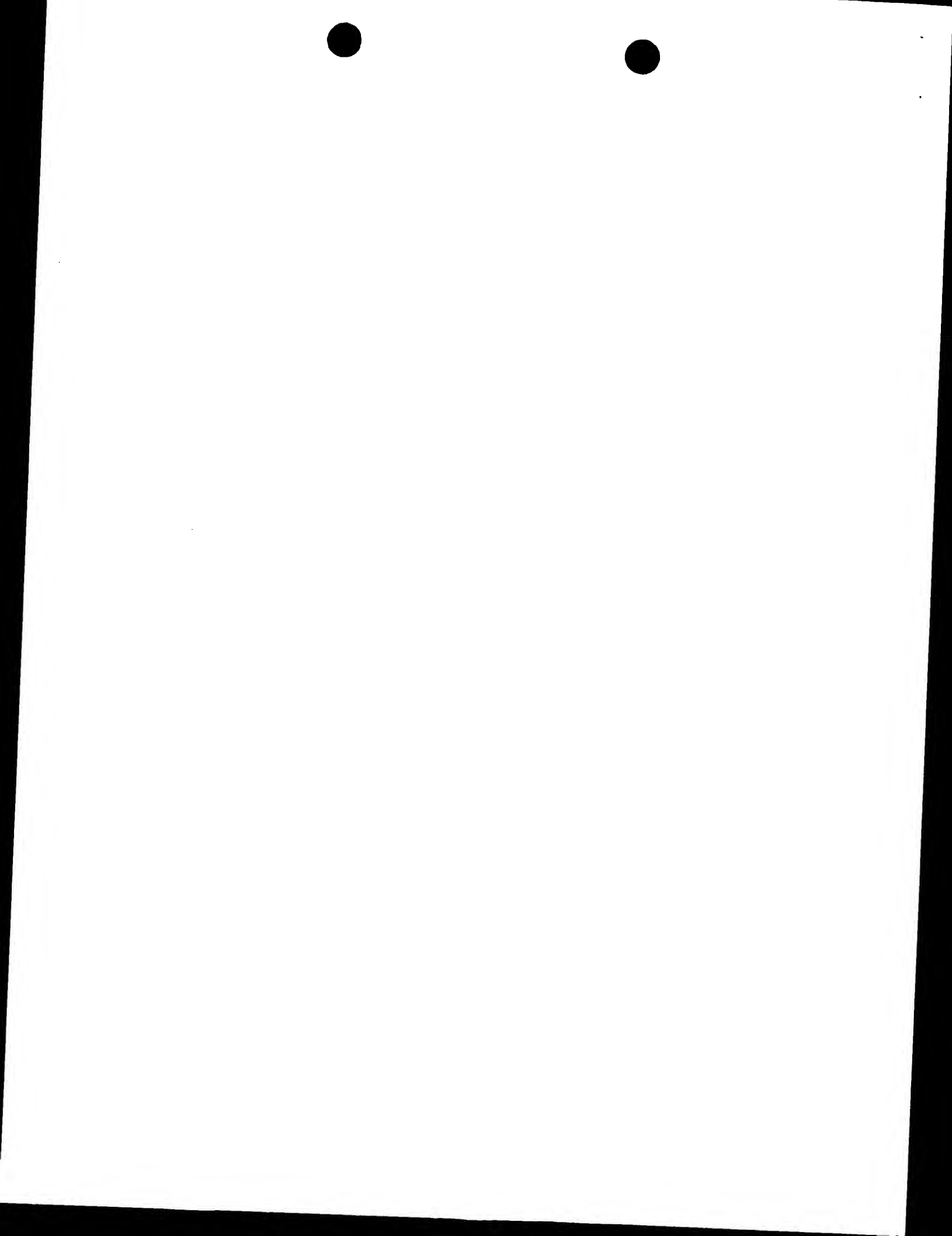
Der beanspruchte Reaktor scheint die Aufgabe zu lösen, unabhängig von Durchmesser, Rohrzahl, Druckdifferenz und/oder Inhalt des Reaktors. (Siehe geänderte Seiten 3 und 3a).



PCT/EP99/01036

Patentansprüche:

1. Röhrenreaktor (2) für katalytische Gasphasenreaktionen, mit einem innerhalb eines Reaktormantels (10) von einem Wärmeträger umspülten Kontaktrohrbündel (8), das sich, dort beginnend bzw. endend und daran abgedichtet, zwischen einem gaseintrittsseitigen Rohrboden (4) und einem gasaustrittsseitigen Rohrboden (6) erstreckt, mit die beiden Rohrböden stirnseitig überspannenden Gaseintritts- bzw. Gasaustrittshauben (12, 14) und mit einer an den gaseintrittsseitigen Rohrboden wärmeträgerseitig angrenzenden Wärmeisulationszone (46), dadurch **gekennzeichnet**, daß die beiden Rohrböden (4, 6) in an sich bekannter Weise an ihrem Rand abgedichtet am Reaktormantel (10) verankert sind und daß die Wärmeisulationszone (46) von einer ein festes, flüssiges oder gasförmiges Wärmeisulationsmaterial enthaltenden Kammer (64) oder von in bezug auf den Wärmeträger strömungsberuhigenden Einbauten (84) gebildet wird.
2. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 1, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Wärmeisulationszone (46) eine örtlich variierende Dicke aufweist.
3. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 1 oder 2, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Wärmeisulationszone (46) einen örtlich variierenden Aufbau aufweist.
4. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch **gekennzeichnet**, daß sich die Wärmeisulationszone (46) auf Teilbereiche, wie z.B. rohrfreie Stellen oder den Randbereich des gaseintrittsseitigen Rohrbodens (4), beschränkt.



5. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche mit einer Wärmeisolationszone (46) in Gestalt einer Kammer (64), dadurch *gekennzeichnet*, daß ein flüssiges oder gasförmiges Wärmeisolationsmaterial in der Kammer durch in die Kammer eingebaute Strukturen an einer Zirkulation gehindert ist.
6. Röhrenreaktor (2) nach einem der Ansprüche 1 bis 4 mit einer Wärmeisolationszone (46) in Gestalt einer Kammer (64), dadurch *gekennzeichnet*, daß ein flüssiges oder gasförmiges Wärmeisolationsmaterial als Kühlmittel durch die Kammer hindurch umgewälzt wird.
7. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 6, dadurch *gekennzeichnet*, daß als flüssiges oder gasförmiges Wärmeisolationsmaterial ein Teilstrom des das Kontaktröhrbündel (8) umspülenden Wärmeträgers Verwendung findet.
8. Röhrenreaktor (2) nach einem der Ansprüche 1 bis 4 mit einer von Einbauten (84) gebildeten Wärmeisolationszone (46), dadurch *gekennzeichnet*, daß die Einbauten eine Waben- oder konzentrische Ringstruktur aufweisen.
9. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 8, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Einbauten (84) zumindest auf ihrer dem gaseintrittsseitigen Rohrboden (4) abgekehrten Seite abgedeckt, vorzugsweise abgedichtet, sind.



Im Versuch, solche Nebenreaktionen zu verhindern, hat man in die Gaseintrittshaube bereits Schüttungen aus keramischen Materialien oder ein Drahtmattengeflecht eingebracht. Ferner hat man versucht, da am gaseintrittsseitigen Rohrboden im Bereich der Rohrmündungen gewöhnlich die höchsten Temperaturen auftreten, diese Rohrmündungen durch eingesetzte Tüllen wärmezuisolieren. All diese Maßnahmen haben sich jedoch letztendlich nicht als wirkungsvoll oder zumindest als zuverlässig im Sinne einer Vermeidung der vorausgehend angesprochenen Nebenreaktionen erwiesen.

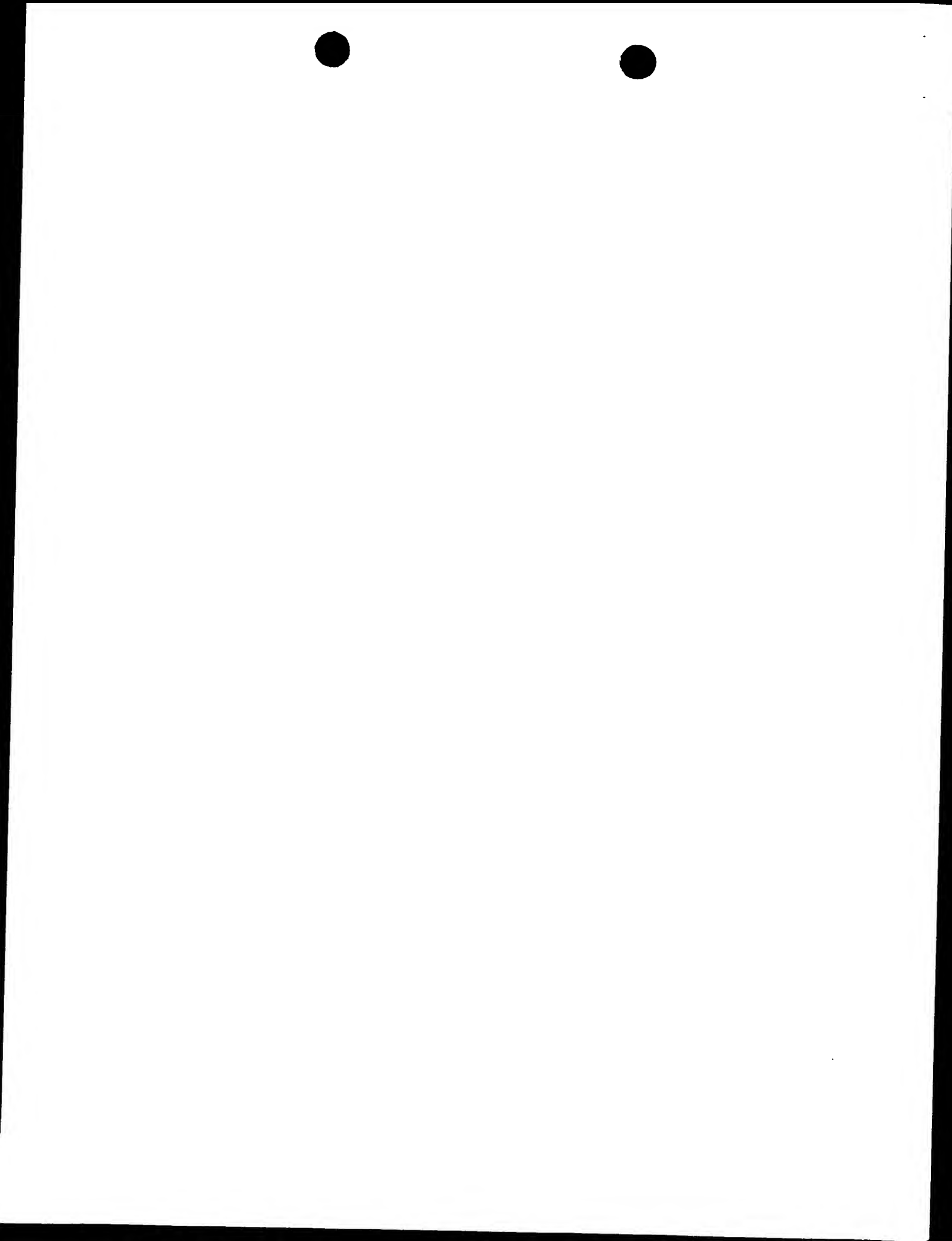
In US 2 986 454 A ist bereits vorgeschlagen worden, den reaktionsgaseintrittsseitigen Kontaktrohren sog. Isolationsrohre vorzuschalten, die von einer luftdurchströmten Kühlkammer umschlossen sind, um so das eintretende Reaktionsgasgemisch vor Eintritt der beabsichtigten Reaktion von heißen Teilen entfernt zu halten. Obgleich die vorgeschalteten Isolationsrohre an die darauffolgenden Kontaktrohre abgedichtet anschließen sollen, ist doch vorgesehen, die durch die Kühlkammer hindurchgeführte Luft anschließend dem Prozeßgas zuzusetzen. Es versteht sich, daß ein solches Vorgehen auf bestimmte Anwendungen beschränkt ist. Darüber hinaus bilden die - zwecks Ausgleichs unterschiedlicher Wärmedehnungen - mit einem Rollbund schwenkbar in die Kontaktrohre hineinragenden Isolationsrohre für die Katalysatoreinbringung und -entleerung unerwünschte Einschnürungen. Dies gilt in besonderem Maße, wenn der Reaktor eine große Vielzahl Kontaktrohre, beispielsweise über 10000, und einen großen Durchmesser, beispielsweise 7000 mm, aufweist, wo mit temperaturbedingten Versetzungen im Randbereich von ca. 10 mm zu rechnen ist.

Des weiteren ist es aus GB 776 416 A bekannt, bei einem Röhrenwärmetauscher zum Kühlen oder Aufheizen gesättigter Lösungen,



der gleichfalls ein sich zwischen zwei Rohrböden erstreckendes, von einem Wärmeträger umspültes Rohrbündel aufweist, zur Vermeidung einer Auskristallisation an den Rohrböden wärmeträgerseitig eine gegossene und anschließend erhärtete Wärmeisolationsschicht vorzusehen. Derartige Materialien, die beim Gießen dünnflüssig genug sein müssen, um sich um die Rohre herum in gewünschter Weise zu verteilen, wie z.B. Kunstharz, weisen jedoch nur eine begrenzte Temperaturbeständigkeit auf, die sie etwa für die Verwendung geschmolzener Salze als Wärmeträger ungeeignet macht.

Schließlich ist es aus US-A-4 127 389 - wovon im Gattungsbegriff des Anspruchs 1 ausgegangen wird - bekannt, die Gasein- und Gasaustrittshauben samt den zugehörigen Rohrböden als eigene Kammern innerhalb des Reaktorgehäuses auszubilden, die im wesentlichen allseitig von strömungsberuhigtem Wärmeträger umgeben sind. Dazu ist in einem Abstand parallel zu jedem Rohrboden eine von den Kontaktrohren durchsetzte, nicht abgedichtete Platte angeordnet, deren gaseintrittsseitige eine Isolierschicht aus gegossenem Feuerfestmaterial trägt. Hier handelt es sich um einen verhältnismäßig schlanken, endothermen Hochtemperaturreaktor, dessen Wärmeträger eine Temperatur zwischen 1075 und 870°C aufweisen soll und somit mit Gewißheit gasförmig ist. Zudem noch soll die Druckdifferenz zwischen Prozeßgas und Wärmeträger maximal knapp 7 bar betragen. Dementsprechend können die Rohrböden samt ihrer Aufhängung verhältnismäßig leicht ausgebildet werden. Hätten sie neben dem Gewicht der Rohre das Gewicht eines flüssigen Wärmeträgers zu tragen, so wäre ihre übliche unmittelbare Verankerung am Reaktormantel unentbehrlich. Dies gilt um so mehr für eine Reaktorausführung vergleichsweise großen Durchmessers mit vielen Rohren.



Davon ausgehend liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, einen Röhrenreaktor gemäß Gattungsbegriff, d.h. mit einer an den gas-eintrittsseitigen Rohrboden wärmeträgerseitig angrenzenden Wärmeisulationszone, so zu gestalten, daß er mit praktisch jedem gängigen Durchmesser, jeder gängigen Rohrzahl, jeder gängigen Druckdifferenz und jedem denkbaren Wärmeträger einschließlich etwa eines Salzbadetes betrieben werden kann.

Diese Aufgabe ist erfindungsgemäß durch die Kennzeichnungsmerkmale des Anspruchs 1 gelöst. Die Unteransprüche geben darüber hinausgehend vorteilhafte Ausgestaltungsmöglichkeiten an.

Die betreffende Wärmeisulationszone am gaseintrittsseitigen Rohrboden in Gestalt einer Kammer oder von strömungsberuhigenden Einbauten gebildet bewirkt, daß der reaktionsgaseintrittsseitige Rohrboden und mit ihm auch der angrenzende Bereich der Gaseintrittshaube verhältnismäßig kühl gehalten wird, ohne daß es dazu irgendwelcher Einschränkungen in der Prozeßführung, der Reaktorausführung oder hinsichtlich des verwendeten Wärmeträgers bedarf. Dabei kann aber auch durch entsprechende Ausbildung der betreffenden Wärmeisulationszone trotz des an den Reaktormantel anschließenden, verhältnismäßig kalten Rohrbodens der Temperaturgradient an diesem Anschluß gering gehalten



PCT/EP 99/01036

07. Feb. 2000

Im Versuch, solche Nebenreaktionen zu verhindern, hat man in die Gaseintrittshaube bereits Schüttungen aus keramischen Materialien oder ein Drahtmattengeflecht eingebracht. Ferner hat man versucht, da am gaseintrittsseitigen Rohrboden im Bereich der Rohrmündungen gewöhnlich die höchsten Temperaturen auftreten, diese Rohrmündungen durch eingesetzte Tüllen wärmeisulieren. All diese Maßnahmen haben sich jedoch letztendlich nicht als wirkungsvoll oder zumindest als zuverlässig im Sinne einer Vermeidung der vorausgehend angesprochenen Nebenreaktionen erwiesen.

In US 2 986 454 A - wovon der Gattungsbegriff des Anspruchs 1 ausgeht - ist bereits vorgeschlagen worden, den reaktionsgaseintrittsseitigen Kontaktrohren sog. Isolationsrohre vorzuschalten, die von einer luftdurchströmten Kühlkammer umschlossen sind, um so das eintretende Reaktionsgasgemisch vor Eintritt der beabsichtigten Reaktion von heißen Teilen entfernt zu halten. Obgleich die vorgeschalteten Isolationsrohre an die darauffolgenden Kontaktrohre abgedichtet anschließen sollen, ist doch vorgesehen, die durch die Kühlkammer hindurchgeführte Luft anschließend dem Prozeßgas zuzusetzen. Es versteht sich, daß ein solches Vorgehen auf bestimmte Anwendungen beschränkt ist. Darüber hinaus bilden die - zwecks Ausgleichs unterschiedlicher Wärmedehnungen - mit einem Rollbund schwenkbar in die Kontaktrohre hineinragenden Isolationsrohre für die Katalysatoreinbringung und -entleerung unerwünschte Einschnürungen. Dies gilt in besonderem Maße, wenn der Reaktor eine große Vielzahl Kontaktrohre, beispielsweise über 10000, und einen großen Durchmesser, beispielsweise 7000 mm, aufweist, wo mit temperaturbedingten Versetzungen im Randbereich von ca. 10 mm zu rechnen ist.

Des weiteren ist es aus GB 776 416 A bekannt, bei einem Röhrenwärmetauscher zum Kühlen oder Aufheizen gesättigter Lösungen,

GEAENDERTES BLATT





der gleichfalls ein sich zwischen zwei Rohrböden erstreckendes, von einem Wärmeträger umspültes Rohrbündel aufweist, zur Vermeidung einer Auskristallisation an den Rohrböden wärmeträgerseitig eine gegossene und anschließend erhärtete Wärmeisolationsschicht vorzusehen. Derartige Materialien, die beim Gießen dünnflüssig genug sein müssen, um sich um die Rohre herum in gewünschter Weise zu verteilen, wie z.B. Kunstharz, weisen jedoch nur eine begrenzte Temperaturbeständigkeit auf, die sie etwa für die Verwendung geschmolzener Salze als Wärmeträger ungeeignet macht.

Von daher liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, einen Röhrenreaktor gemäß Gattungsbegriff mit einer Wärmeisulationszone am reaktionsgaseintrittsseitigen Rohrboden auszustatten, die ihn für die Verarbeitung hoch zündwilliger Prozeßgase bei verhältnismäßig hohen Reaktionstemperaturen unter allen möglichen Gegebenheiten geeignet macht. Auch sollen Einschnürungen im Eingangsbereich der Kontaktrohre vermieden werden.

Diese Aufgabe ist erfindungsgemäß durch die Kennzeichnungsmerkmale des Anspruchs 1 gelöst. Die Unteransprüche geben darüber hinausgehend vorteilhafte Ausgestaltungsmöglichkeiten an.

Die betreffende wärmeträgerseitige Wärmeisulationszone in Verbindung mit einem einzigen gaseintrittsseitigen Rohrboden bewirkt, daß dieser Rohrboden und mit ihm auch der angrenzende Bereich der Gaseintrittshaube verhältnismäßig kühl gehalten wird, ohne daß es dazu irgendwelcher Einschränkungen hinsichtlich der Prozeßführung oder der Reaktorauslegung bedarf. Des weiteren kann aber auch durch entsprechende Ausbildung der betreffenden wärmeträgerseitigen Wärmeisulationszone trotz des damit erhaltenen verhältnismäßig kalten Rohrbodens der Temperaturgradient am Anschluß des Reaktormantels gering gehalten



Röhrenreaktor für katalytische Gasphasenreaktionen

Die Erfindung betrifft einen Röhrenreaktor für katalytische Gasphasenreaktionen gemäß Gattungsbegriff des Patentanspruchs 1.

Derartige Reaktoren weisen regelmäßig ein innerhalb eines Reaktormantels von einem Wärmeträger umspültes Kontaktrohrbündel, das sich zwischen einem gaseintrittsseitigen und einem gasaustrittsseitigen Rohrboden erstreckt, sowie die beiden Rohrböden stirnseitig überspannende Gaseintritts- bzw. Gasaustrittshauben auf. Das zur Reaktion zu bringende Prozeßgas, im allgemeinen ein Gasgemisch, wird über die Gaseintrittshaube in die eine Katalysatormasse enthaltenden Kontaktrohre eingeleitet und nach Passieren derselben über die Gasaustrittshaube aus dem Reaktor abgeführt. Dabei kann sich der Gaseintritt oberseitig oder unterseitig befinden und der Wärmeträger gesamtheitlich gesehen im Gleich- oder Gegenstrom in bezug auf den Prozeßgasstrom durch den Reaktor hindurchtreten. Auch kann der Reaktor, wie etwa in DE 22 01 528 C, Fig. 5, gezeigt, mehrstufig ausgebildet sein.

Gewöhnlich wird der Prozeßgasstrom aus zwei oder mehreren erst kurz vor Eintritt in den Reaktor, d.h. dessen Gaseintrittshaube, zusammengeführten Stoffströmen erhalten. Dabei kann es, vor allem in unmittelbarer Nähe des gewöhnlich verhältnismäßig heißen Rohrbodens, zu für den Prozeß schädlichen Nebenreaktionen, ja sogar Zündungen und Deflagrationen kommen. Beispiele derartiger Reaktionsprozesse sind die Herstellung von Maleinsäureanhydrid, Phtalsäureanhydrid, Acrolein und Acrylsäure.

GEÄNDERTES BLATT

werden, wie dies zur Geringhaltung von Temperaturspannungen wünschenswert ist.

Nachfolgend werden einige bevorzugte Ausführungsbeispiele des betreffenden Röhrenreaktors anhand der Zeichnungen genauer beschrieben. Dabei zeigt

Fig. 1 einen schematischen Längsschnitt durch einen erfindungsgemäßen Röhrenreaktor in einer ersten Ausführungsform samt anschließenden Elementen,

Fig. 2 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines ebensolchen Röhrenreaktors, jedoch mit einer Variante,

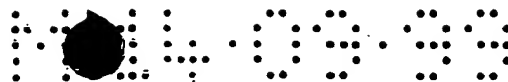
Fig. 3 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines Röhrenreaktors wie aus Fig. 1 mit einer anderen Variante,

Fig. 4 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in einer konkreten Ausführungsform und

Fig. 5 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in einer anderen konkreten Ausführungsform.

Soweit in den einzelnen Figuren ohne weiteres vergleichbare Elemente auftreten, sind diese mit den gleichen Bezugszahlen bezeichnet.

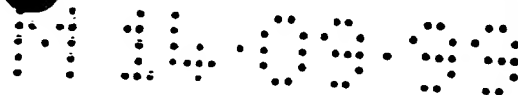
GEÄNDERTES BLATT



Der in Fig. 1 dargestellte Röhrenreaktor 2 weist in insoweit üblicher Weise ein vertikales, sich von einem gaseintrittsseitigen Rohrboden 4 zu einem gasaustrittsseitigen Rohrboden 6 erstreckendes Rohrbündel 8 innerhalb eines zylindrischen Reaktormantels 10 auf, an dem die beiden Rohrböden 4 und 6 abgedichtet angebracht sind. Der gaseintrittsseitige Rohrboden 4 ist von einer Gaseintrittshaube 12 und der gasaustrittsseitige Rohrboden 6 von einer Gasaustrittshaube 14 überspannt, die wiederum an dem jeweiligen Rohrboden abgedichtet angebracht ist. Die einzelnen Rohre, wie z.B. 16, des Rohrbündels 8 enthalten eine gasdurchlässige Katalysatormasse. Das damit zur Reaktion zu bringende Reaktions- oder Prozeßgas gelangt über eine Gaszuführungsleitung 18 in die Gaseintrittshaube 12, während das durch das Rohrbündel 8 hindurchgetretene, zur Reaktion gekommene Prozeßgas aus der Gasaustrittshaube 14 über eine Gasabführungsleitung 20 abgezogen wird. Den Reaktormantel 10 umgebende Ringkanäle 22 und 24 in der Nähe der beiden Rohrböden 4 und 6 ermöglichen die Zuführung bzw. Abführung eines zumindest im Betrieb des Reaktors flüssigen Wärmeträgers in den bzw. aus dem Reaktormantel 10, wo er die einzelnen Rohre, wie z.B. 16, des Rohrbündels 8 von außen umspült, um Reaktionswärme abzuführen. Dabei kann die Strömung des Wärmeträgers, wie gezeigt, durch zweierlei Leitbleche, 26 bzw. 28, in gewünschter Weise geführt und ggf. auch über den Reaktormantelquerschnitt verteilt werden. Der über den Ringkanal 22 aus dem Reaktormantel 10 abgezogene Wärmeträger wird durch eine Pumpe 30 dem Reaktormantel 10 über den Ringkanal 24 wieder zugeführt, wobei ein steuerbarer Teilstrom vermittels Zweigleitungen 32 und 34 über einen (nicht dargestellten) Kühler geführt wird.

Das über die Gaszuführungsleitung 18 dem Reaktor zugeführte Prozeßgas setzt sich (in diesem Beispiel) aus zwei Stoffströmen 36

GEÄNDERTES BLATT



und 38 zusammen, die, über Wärmetauscher 40 bzw. 42 vorgewärmt, in einem Mischer 44 gemischt werden, um als das vorerwähnte Prozeßgas durch die Gaszuführungsleitung 18 der Gaseintrittshaube 12 zugeführt zu werden.

In manchen Fällen ist das zugeführte Prozeßgas als solches bereits sehr reaktionsträchtig, insbesondere wenn es mit heißen Flächen in Berührung kommt, und innerhalb des unter der Gaseintrittshaube 12 befindlichen Raumes bildet normalerweise der Rohrboden die heißeste Fläche. Aus diesem Grunde sieht die Erfindung vor, den Rohrboden 4 gegenüber dem das Rohrbündel 8 umspülenden Wärmeträger durch eine wärmeträgerseitige Wärmeisolationszone 46 wärmezuisolieren und damit samt der angrenzenden Partie der Gaseintrittshaube 12 verhältnismäßig kühl zu halten.

In den Figuren 1, 2 und 3 ist die betreffende Wärmeisolationszone 46 lediglich schematisch gezeichnet. Während sie nach Fig. 1 eine gleichmäßige Dicke besitzt, nimmt ihre Dicke nach Fig. 2 zur Mitte hin zu unter der Annahme, daß der Rohrboden dort normalerweise die höchste Temperatur aufweist.

Es versteht sich, daß bei anderer Temperaturverteilung das Profil der Wärmeisolationszone 46 auch eine andere Form annehmen kann. So etwa kann die Wärmeisolationszone 46, wie in Fig. 3 gezeigt, am Rand des Rohrbodens 4 entlang der Innenwand des Reaktormantels 10 einen Kragen 48 aufweisen, um den Temperaturgradienten am Anschluß des Reaktormantels an den kühleren Rohrboden und damit Temperaturspannungen gering zu halten. Auch kann, wie gleichfalls aus Fig. 3 ersichtlich, die Dicke der Wärmeisolationszone 46 im Bereich rohrfreier Zonen des Reaktors eine andere, in der Regel eine größere als im Rohrbereich sein, um so der

GEÄNDERTES BLATT

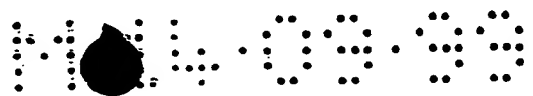
dort normalerweise stärkeren Erwärmung des Rohrbodens Rechnung zu tragen. Sodann ist es denkbar, anstatt die Dicke oder nur die Dicke der Wärmeisolationszone deren Aufbau zu variieren. Auch kann sich die Wärmeisolationszone 46 auf Teilbereiche des Rohrbodens 4, so etwa rohrfreie Zonen oder den Randbereich des Rohrbodens am Übergang zum Reaktormantel 10, beschränken.

Fig. 4 zeigt eine praktische Ausführungsform der Wärmeisolationszone 46 wie sie in Fig. 1 nur schematisch gezeigt ist. Hier-nach besteht die Wärmeisolationszone 46 aus einer gegenüber der Reaktionszone 62 des Reaktors abgeschlossenen Kammer 64. Die Kammer 64 besitzt übereinanderliegende Ein- und Auslässe 66 bzw. 68 für ein Kühlmittel sowie ein dazwischenliegendes Leitblech 70, welches das Kühlmittel zwingt, an dem Rohrboden 4 wie auch einer Trennscheibe 72 entlangzustömen, welche die Kammer 64 von der Reaktionszone 62 trennt. Durch die Trennscheibe 72 sind die Rohre, wie z.B. 16, eingedichtet hindurchgeführt.

Das betreffende Kühlmittel kann aus dem gleichen oder einem anderen Medium bestehen wie der Wärmeträger in der Reaktionszone 62. Im ersteren Fall kann es an geeigneter Stelle nach dessen Rückkühlung von dem Wärmeträgerkreislauf nach Fig. 1 abgezweigt werden. Auch spielen in diesem Fall etwaige kleinere Undichtigkeiten an der Rohrdurchführung durch die Trennscheibe 72 keine entscheidende Rolle. Dennoch sollte in der Kammer 64 in bezug auf die Reaktionszone 62 etwa der gleiche Druck aufrechterhalten werden, um Leckströmungen an der Rohrdurchführung gering zu halten.

Indessen kann die Kammer 64 auch evakuiert oder mit einem unbeweglichen festen, flüssigen oder gasförmigen Wärmeisolationsmit-

GEÄNDERTES BLATT



tel, wie z.B. Sand, Öl oder Luft, gefüllt sein. Dabei kann ein flüssiges oder gasförmiges Wärmeisolationismittel durch eine eingebaute Zellenstruktur an einer Zirkulation gehindert sein. Auf jeden Fall sollte das in der Kammer 64 verwendete Kühl- oder Wärmeisolationismittel ein solches sein, welches mit dem in der Reaktionszone 62 auftretenden Wärmeträger nicht zu reagieren vermag.

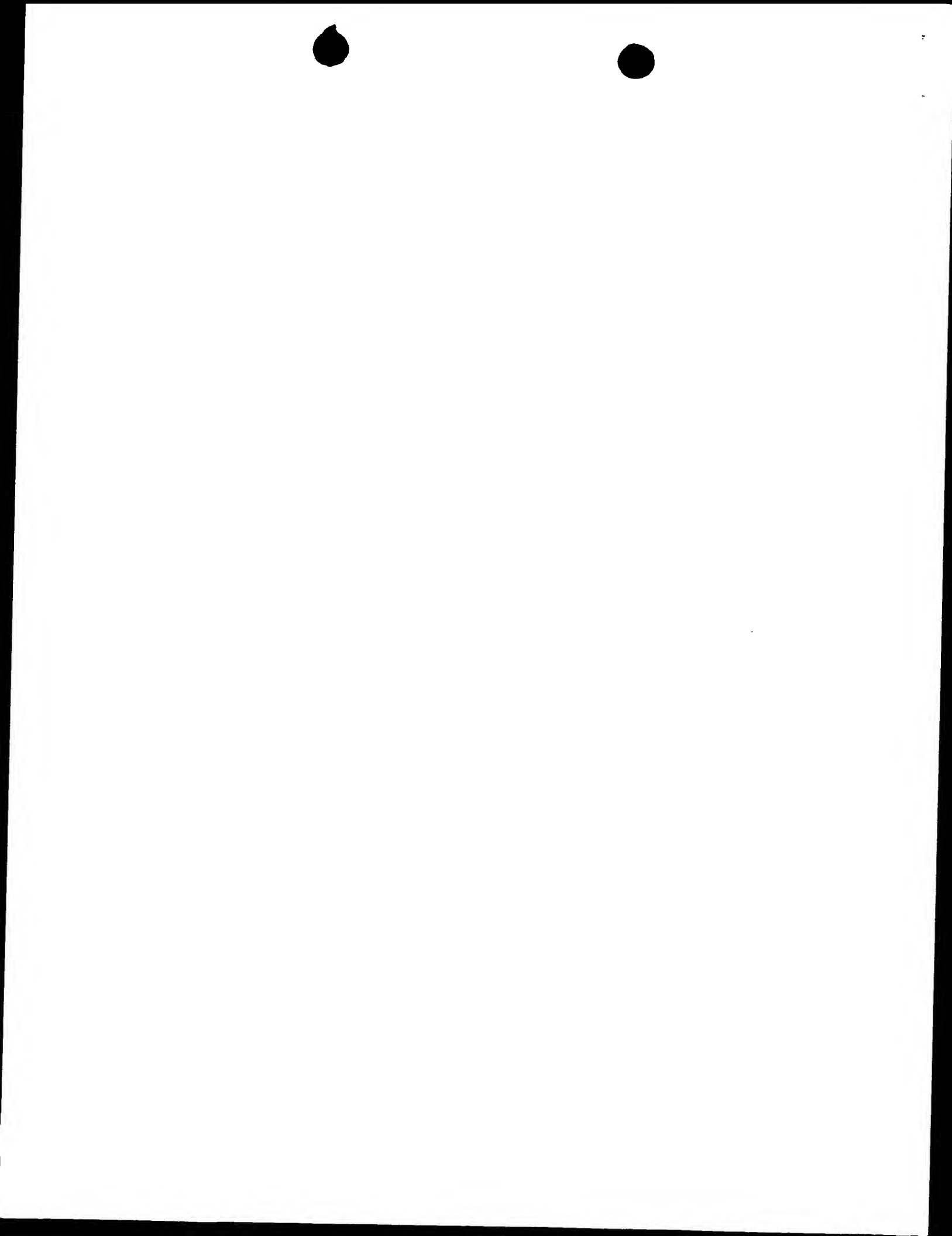
Nach Fig. 5 besteht die Wärmeisulationszone 46 lediglich aus einer durch Einbauten 84 in Form einer Waben- oder konzentrischen Ringstruktur strömungsberuhigten Zone des Wärmeträgers, der damit dort infolge des vom eintretenden Prozeßgas gekühlten Rohrbodens 4, gleichgültig ob der Reaktor im Gleichstrom oder Gegenstrom arbeitet, in der Regel eine geringere Temperatur annehmen wird als in der eigentlichen Reaktionszone. Dies gilt um so mehr, wenn die Kontaktrohre nicht bis zum Rohrboden hin mit Katalysator gefüllt werden.

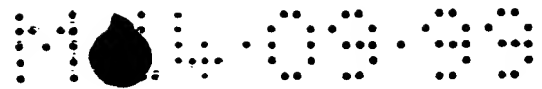
Die Einbauten 84 können, müssen jedoch nicht, wie in Fig. 5 gestrichelt angedeutet, durch eine Platte 86 abgedeckt sein, und ebenso können sie zum Rohrboden 82 hin abgedichtet sein.

Die Erfindung ist prinzipiell gleichermaßen anwendbar für exotherm wie endotherm arbeitende Reaktoren, auch Mehrstufenreaktoren wie etwa in DE 22 01 528 C, Fig. 5, gezeigt, und zwar unabhängig davon, ob sich der Gaseintritt oberseitig oder unterseitig befindet und der Wärmeträger im Gleich- oder Gegenstrom durch den Reaktor hindurchtritt.

Generell gilt, daß die am gaseintrittsseitigen Rohrboden auftretenden Rohrenden, falls wünschenswert, ganz oder teilweise von

GEÄNDERTES BLATT





Katalysatormasse freigehalten oder mit einem inerten Material oder einer Mischung eines solchen mit Katalysatormaterial gefüllt sein können, um die Reaktionstemperatur in der Nähe des Rohrbodens zu begrenzen.

GEÄNDERTES BLATT

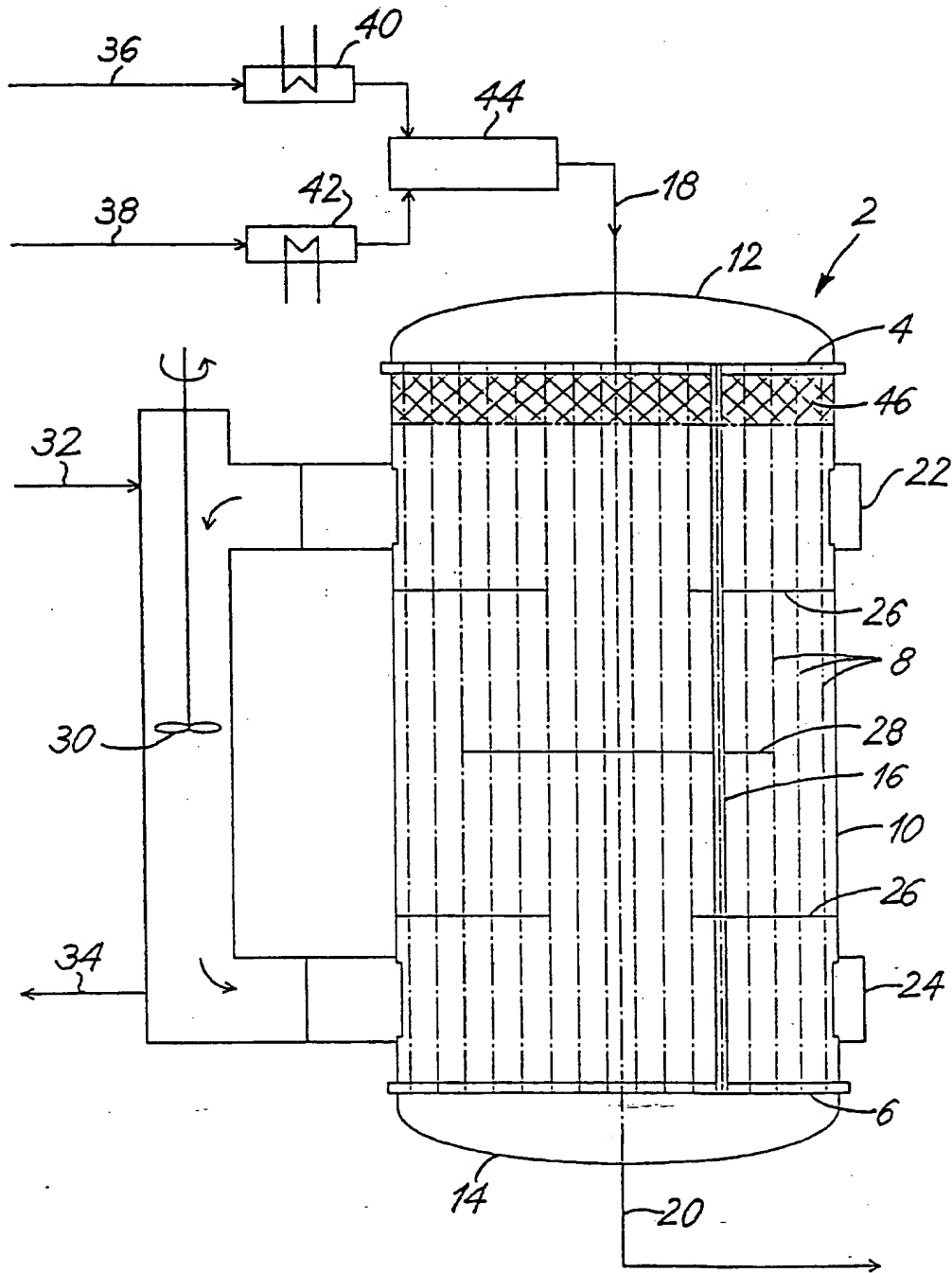


Fig. 1

GEÄNDERTES BLATT



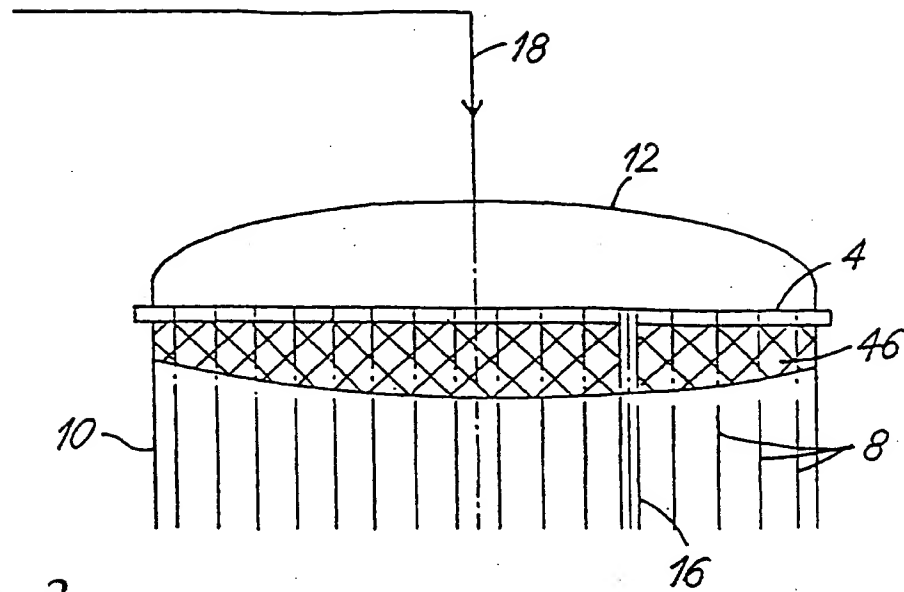


Fig. 2

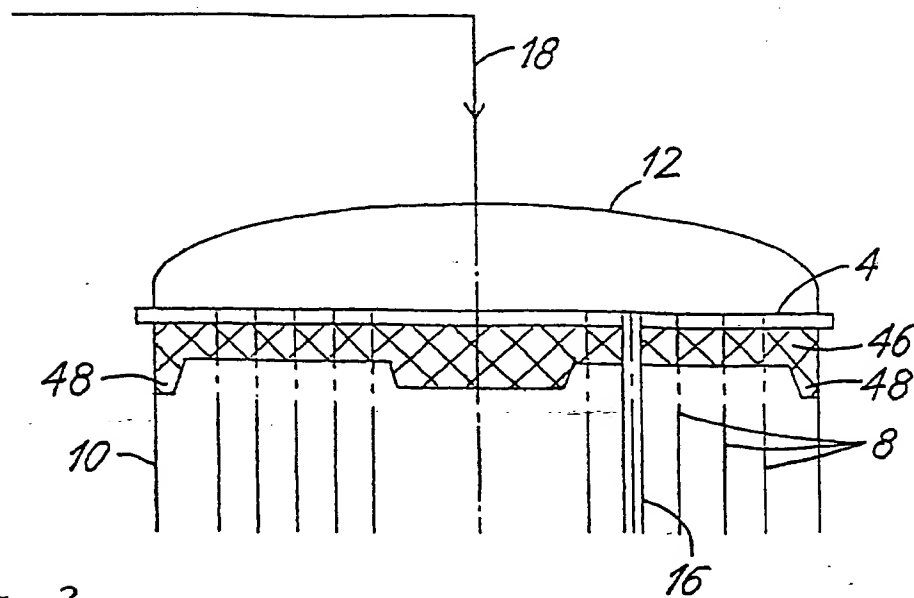


Fig. 3

GEÄNDERTES BLATT

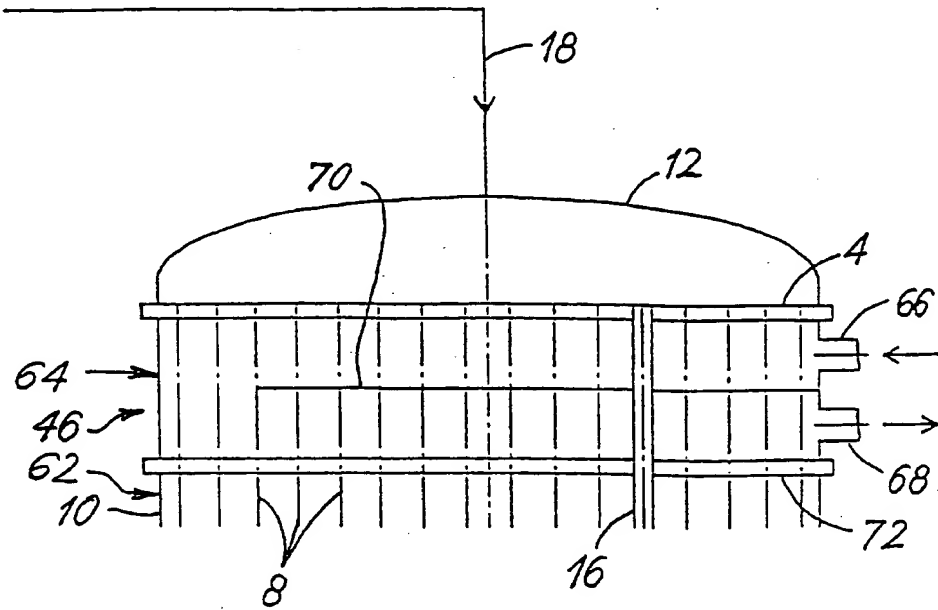


Fig. 4

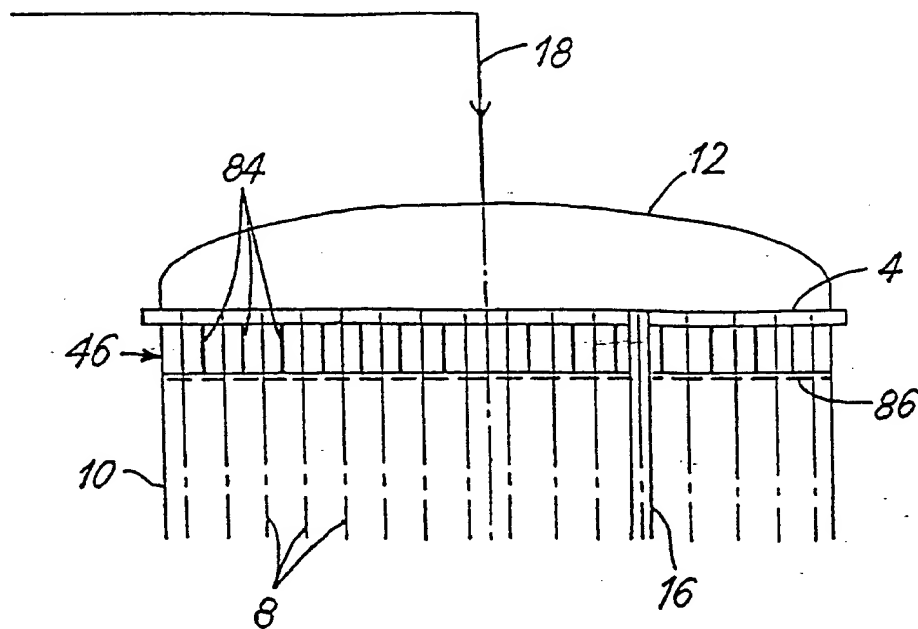


Fig. 5

GEÄNDERTES BLATT

PCT

WELTORGANISATION FÜR GEISTIGES EIGENTUM
Internationales Büro



INTERNATIONALE ANMELDUNG VERÖFFENTLICHT NACH DEM VERTRAG ÜBER DIE
INTERNATIONALE ZUSAMMENARBEIT AUF DEM GEBIET DES PATENTWESENS (PCT)

(51) Internationale Patentklassifikation ⁶ : B01J 8/06		A1	(11) Internationale Veröffentlichungsnummer: WO 99/42208
		(43) Internationales Veröffentlichungsdatum:	26. August 1999 (26.08.99)
(21) Internationales Aktenzeichen: PCT/EP99/01036 (22) Internationales Anmeldedatum: 17. Februar 1999 (17.02.99) (30) Prioritätsdaten: 198 06 810.7 18. Februar 1998 (18.02.98) DE (71) Anmelder (für alle Bestimmungsstaaten ausser US): DEGGENDORFER WERFT UND EISENBAU GMBH [DE/DE]; Werftstrasse 17, D-94469 Deggendorf (DE). (72) Erfinder; und (75) Erfinder/Anmelder (nur für US): GÜTLHUBER, Friedrich [DE/DE]; Gartenstrasse 4, D-94526 Metten (DE). (74) Anwälte: BAUER, Robert usw.; Boeters & Bauer, Bereit- eranger 15, D-81541 München (DE).		(81) Bestimmungsstaaten: US, europäisches Patent (AT, BE, CH, CY, DE, DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE). Veröffentlicht <i>Mit internationalem Recherchenbericht. Vor Ablauf der für Änderungen der Ansprüche zugelassenen Frist; Veröffentlichung wird wiederholt falls Änderungen eintreffen.</i>	

(54) Title: TUBULAR REACTOR FOR CATALYTIC REACTIONS

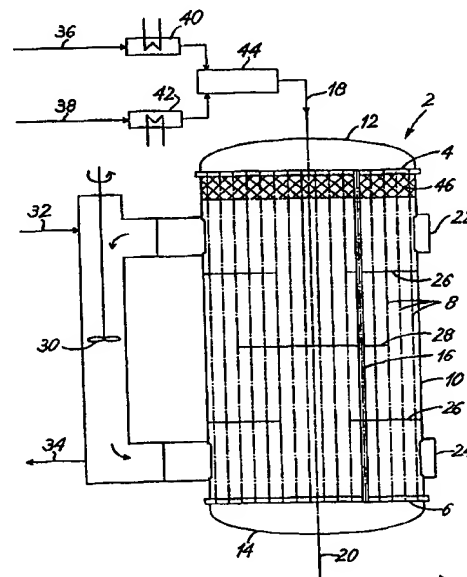
(54) Bezeichnung: RÖHRENREAKTOR FÜR KATALYTISCHE REAKTIONEN

(57) Abstract

The invention relates to a tubular reactor (2) for catalytic reactions, which inside its reactor mantle (10) has a contact tube bundle (8) around which a heat carrying medium circulates. The tube bundle extends between a tube base on the reaction gas entry side and a tube base on the reaction gas exit side (4, 6; 60; 82). The invention also comprises gas entry and gas exit domes (12, 14) which span the two tube bases across their faces, and reaction-inhibiting means in the area of the tube base on the gas entry side. The invention is characterized in that the reaction-inhibiting means wholly or partly consist of a heat insulating layer (46; 50; 64; 80) which does not cover the tube in its cross-section and is situated on at least one side of the corresponding tube base (4; 60; 82). In this way either the corresponding tube base (4; 60; 82) is insulated against the hot heat carrying medium or the reaction gas entering the reactor is prevented from coming into contact with the relatively hot tube base, so that harmful secondary reactions at the reactor entry are avoided.

(57) Zusammenfassung

Ein Röhrenreaktor (2) für katalytische Reaktionen und mit einem innerhalb eines Reaktormantels (10) von einem Wärmeträger umspülten Kontaktrohrbündel (8), das sich zwischen einem reaktionsgaseintrittsseitigen und einem reaktionsgasaustrittsseitigen Rohrboden (4, 6; 60; 82) erstreckt, mit die beiden Rohrböden stirnseitig überspannenden Gaseintritts- bzw. Gasaustrittshauben (12, 14) und mit reaktionshemmenden Mitteln im Bereich des gaseintrittsseitigen Rohrbodens kennzeichnet sich dadurch, dass die reaktionshemmenden Mittel ganz oder teilweise aus einer die Rohrquerschnitte aussparenden Wärmeisolationsschicht (46; 50; 64; 80) auf zumindest einer Seite des betreffenden Rohrbodens (4; 60; 82) bestehen. Damit wird entweder der betreffende Rohrboden (4; 60; 82) gegenüber dem heissen Wärmeträger isoliert oder aber das in den Reaktor eintretende Reaktionsgas daran gehindert, mit dem vergleichsweise heissen Rohrboden in Berührung zu treten, um so schädliche Nebenreaktionen am Reaktoreintritt zu unterbinden.



LEDIGLICH ZUR INFORMATION

Codes zur Identifizierung von PCT-Vertragsstaaten auf den Kopfbögen der Schriften, die internationale Anmeldungen gemäss dem PCT veröffentlichen.

AL	Albanien	ES	Spanien	LS	Lesotho	SI	Slowenien
AM	Armenien	FI	Finnland	LT	Litauen	SK	Slowakei
AT	Österreich	FR	Frankreich	LU	Luxemburg	SN	Senegal
AU	Australien	GA	Gabun	LV	Lettland	SZ	Swasiland
AZ	Aserbaidshan	GB	Vereinigtes Königreich	MC	Monaco	TD	Tschad
BA	Bosnien-Herzegowina	GE	Georgien	MD	Republik Moldau	TG	Togo
BB	Barbados	GH	Ghana	MG	Madagaskar	TJ	Tadschikistan
BE	Belgien	GN	Guinea	MK	Die ehemalige jugoslawische Republik Mazedonien	TM	Turkmenistan
BF	Burkina Faso	GR	Griechenland			TR	Türkei
BG	Bulgarien	HU	Ungarn	ML	Mali	TT	Trinidad und Tobago
BJ	Benin	IE	Irland	MN	Mongolei	UA	Ukraine
BR	Brasilien	IL	Israel	MR	Mauretanien	UG	Uganda
BY	Belarus	IS	Island	MW	Malawi	US	Vereinigte Staaten von Amerika
CA	Kanada	IT	Italien	MX	Mexiko	UZ	Usbekistan
CF	Zentralafrikanische Republik	JP	Japan	NE	Niger	VN	Vietnam
CG	Kongo	KE	Kenia	NL	Niederlande	YU	Jugoslawien
CH	Schweiz	KG	Kirgisistan	NO	Norwegen	ZW	Zimbabwe
CI	Côte d'Ivoire	KP	Demokratische Volksrepublik Korea	NZ	Neuseeland		
CM	Kamerun			PL	Polen		
CN	China	KR	Republik Korea	PT	Portugal		
CU	Kuba	KZ	Kasachstan	RO	Rumänien		
CZ	Tschechische Republik	LC	St. Lucia	RU	Russische Föderation		
DE	Deutschland	LI	Liechtenstein	SD	Sudan		
DK	Dänemark	LK	Sri Lanka	SE	Schweden		
EE	Estland	LR	Liberia	SG	Singapur		

Röhrenreaktor für katalytische Reaktionen

Die Erfindung betrifft einen Röhrenreaktor für katalytische Reaktionen gemäß Gattungsbegriff des Patentanspruchs 1.

Derartige Reaktoren weisen regelmäßig ein innerhalb eines Reaktormantels von einem Wärmeträger umspültes Kontaktrohrbündel, das sich zwischen einem reaktionsgaseintrittsseitigen und einem reaktionsgasaustrittsseitigen Rohrboden erstreckt, sowie die beiden Rohrböden stirnseitig überspannende Gaseintritts- bzw. Gasaustrittshauben auf. Das zur Reaktion zu bringende Prozeßgas, im allgemeinen ein Gasgemisch, wird über die Gaseintrittshaube in die eine Katalysatormasse enthaltenden Kontaktrohre eingeleitet und nach Passieren derselben über die Gasaustrittshaube aus dem Reaktor abgeführt. Dabei kann sich der Gaseintritt oberseitig oder unterseitig befinden und der Wärmeträger gesamtheitlich gesehen im Gleich- oder Gegenstrom in bezug auf den Prozeßgasstrom durch den Reaktor hindurchtreten. Auch kann der Reaktor, wie etwa in DE 22 01 528 C, Fig. 5, gezeigt, mehrstufig ausgebildet sein.

Gewöhnlich wird der Prozeßgasstrom aus zwei oder mehreren erst kurz vor Eintritt in den Reaktor, d.h. dessen Gaseintrittshaube, zusammengeführten Stoffströmen erhalten. Dabei kann es, vor allem in unmittelbarer Nähe des gewöhnlich verhältnismäßig heißen Rohrbodens, zu für den Prozeß schädlichen Nebenreaktionen, ja sogar Zündungen und Deflagrationen kommen. Beispiele derartiger

Reaktionsprozesse sind die Herstellung von Maleinsäureanhydrid, Phtalsäureanhydrid, Acrolein und Acrylsäure.

Im Versuch, solche Nebenreaktionen zu verhindern, hat man in die Gaseintrittshaube bereits Schüttungen aus keramischen Materialien oder ein Drahtmattengeflecht eingebracht. Ferner hat man versucht, da am gaseintrittsseitigen Rohrboden im Bereich der Rohrmündungen gewöhnlich die höchsten Temperaturen auftreten, diese Rohrmündungen durch eingesetzte Tüllen wärmezuisolieren. All diese Maßnahmen haben sich jedoch letztendlich nicht als wirkungsvoll oder zumindest als zuverlässig im Sinne einer Vermeidung der vorausgehend angesprochenen Nebenreaktionen erwiesen.

Von daher liegt der Erfindung die Aufgabe zugrunde, einen Röhrenreaktor gemäß Gattungsbegriff so auszubilden, daß Nebenreaktionen innerhalb der Gaseintrittshaube, wie vor allem Zündungen und Deflagrationen, zuverlässig unterbunden werden.

Diese Aufgabe ist erfindungsgemäß maßgeblich durch das Kennzeichnungsmerkmal des Anspruchs 1 gelöst. Die Unteransprüche geben darüber hinausgehend vorteilhafte Ausgestaltungsmöglichkeiten an.

Die betreffende Wärmeisolationsschicht an dem gaseintrittsseitigen Rohrboden bewirkt, gaseintrittsseitig, daß das eintretende Prozeßgas von dem heißen Rohrboden ferngehalten wird, und auf der Seite des die Kontaktrohre umspülenden Wärmeträgers, daß der Rohrboden im Verhältnis zu diesem Wärmeträger kühl gehalten wird.

Nachfolgend werden bevorzugte Ausführungsbeispiele des betreffenden Röhrenreaktors anhand der Zeichnungen genauer beschrieben. Dabei zeigt

Fig. 1 einen schematischen Längsschnitt durch einen erfindungsgemäßen Röhrenreaktor in einer ersten Ausführungsform samt anschließenden Elementen,

Fig. 2 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines ebensolchen Röhrenreaktors, jedoch mit einer Variante,

Fig. 3 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines Röhrenreaktors wie aus Fig. 1, jedoch mit einer anderen Variante,

Fig. 4 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in einer anderen Ausführungsform,

Fig. 5 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in einer weiteren Ausführungsform und

Fig. 6 einen schematischen Längsschnitt durch den gaseintrittsseitigen Endabschnitt eines erfindungsgemäßen Röhrenreaktors in noch einer weiteren Ausführungsform.

Soweit in den einzelnen Figuren ohne weiteres vergleichbare Elemente auftreten, sind diese mit den gleichen Bezugszahlen bezeichnet.

Der in Fig. 1 dargestellte Röhrenreaktor 2 weist in insoweit üblicher Weise ein vertikales, sich von einem gaseintrittsseitigen Rohrboden 4 zu einem gasaustrittsseitigen Rohrboden 6 erstreckendes Rohrbündel 8 innerhalb eines zylindrischen Reaktormantels 10 auf, an dem die beiden Rohrböden 4 und 6 abgedichtet angebracht sind. Der gaseintrittsseitige Rohrboden 4 ist von einer Gaseintrittshaube 12 und der gasaustrittsseitige Rohrboden 6 von einer Gasaustrittshaube 14 überspannt, die wiederum an dem jeweiligen Rohrboden abgedichtet angebracht ist. Die einzelnen Rohre, wie z.B. 16, des Rohrbündels 8 enthalten eine gasdurchlässige Katalysatormasse. Das damit zur Reaktion zu bringende Reaktions- oder Prozeßgas gelangt über eine Gaszuführungsleitung 18 in die Gaseintrittshaube 12, während das durch das Rohrbündel 8 hindurchgetretene, zur Reaktion gekommene Prozeßgas aus der Gasaustrittshaube 14 über eine Gasabführungsleitung 20 abgezogen wird. Den Reaktormantel 10 umgebende Ringkanäle 22 und 24 in der Nähe der beiden Rohrböden 4 und 6 ermöglichen die Zuführung bzw. Abführung eines zumindest im Betrieb des Reaktors flüssigen Wärmeträgers in den bzw. aus dem Reaktormantel 10, wo es die einzelnen Rohre, wie z.B. 16, des Rohrbündels 8 von außen umspült, um Reaktionswärme abzuführen. Dabei kann die Strömung des Wärmeträgers, wie gezeigt, durch zweierlei Leitbleche 26 bzw. 28 in gewünschter Weise geführt und ggf. auch über den Reaktormantelquerschnitt verteilt werden. Der über den Ringkanal 22 aus dem Reaktormantel 10 abgezogene Wärmeträger wird durch eine Pumpe 30 dem Reaktormantel 10 über den Ringkanal 24 wieder zugeführt, wobei ein steuerbarer Teilstrom vermittels Zweigleitungen 32 und 34 über einen (nicht dargestellten) Kühler geführt wird.

Das über die Gaszuführungsleitung 18 dem Reaktor zugeführte Prozeßgas setzt sich (in diesem Fall) aus zwei Stoffströmen 36 und 38 zusammen, die, über Wärmetauscher 40 bzw. 42 vorgewärmt, in einem Mischer 44 gemischt werden, um als das vorerwähnte Prozeßgas durch die Gaszuführungsleitung 18 der Gaseintrittshaube 12 zugeführt zu werden.

In manchen Fällen ist das zugeführte Prozeßgas als solches bereits sehr reaktionsträchtig, insbesondere wenn es mit heißen Flächen in Berührung kommt, und innerhalb des unter der Gaseintrittshaube 12 befindlichen Raumes bildet normalerweise der Rohrboden die heißeste Fläche. Aus diesem Grunde sieht die Erfindung vor, den Rohrboden 4 wärmeisulieren, sei es gegenüber dem das Rohrbündel 8 umspülenden Wärmeträger, wie beispielsweise in Fig. 1 gezeigt, sei es gegenüber dem eintretenden Prozeßgas, wie in Fig. 3 gezeigt, oder beidem. Im einen Fall bewirkt die Isolierung, daß der Rohrboden vergleichsweise kühl gehalten wird, im anderen, daß das Prozeßgas daran gehindert wird, mit dem heißen Rohrboden in Berührung zu kommen.

Gemäß den Figuren 1, 2 und 3 besteht die wärmeträgerseitig auf den Rohrboden 4 aufgetragene Wärmeisolationsschicht 46 beispielsweise aus Keramik, etwa einer Glasfritte, oder einem entsprechend wärmefesten Feststoff und umschließt die einzelnen Rohre, wie z.B. 16, ebenso dicht, wie sie sich an den Reaktormantel 10 anschließt. Während die Wärmeisolationsschicht 46 nach Fig. 1 eine gleichmäßige Dicke besitzt, nimmt ihre Dicke nach Fig. 2 zur Mitte hin zu unter der Annahme, daß der Rohrboden dort normalerweise die höchste Temperatur aufweist.

Es versteht sich, daß bei anderer Temperaturverteilung das Profil der Wärmeisolationsschicht, wie z.B. 46, auch eine andere Form annehmen kann. So kann etwa die Wärmeisolationsschicht 46, wie in Fig. 3 gezeigt, am Rand des Rohrbodens 4 entlang der Innenwand des Reaktormantels 10 einen Kragen 48 aufweisen, um den Temperaturgradienten am Anschluß des Reaktormantels an den kühleren Rohrboden und damit Temperaturspannungen gering zu halten. Auch kann, wie gleichfalls aus Fig. 3 ersichtlich, die Dicke der Wärmeisolationsschicht 46 im Bereich rohrfreier Zonen des Reaktors eine andere, in der Regel eine größere als im Rohrbereich sein, um so der dort normalerweise stärkeren Erwärmung des Rohrbodens Rechnung zu tragen. Sodann ist es denkbar, anstatt die Dicke oder nur die Dicke der Wärmeisolationsschicht deren Zusammensetzung zu variieren, sei es durch Variation des Mengenverhältnisses ihrer Komponenten, sei es durch die Wahl völlig unterschiedlicher Materialien. Auch kann sich die Wärmeisolationsschicht, wie z.B. 46, auf Teilbereiche des Rohrbodens, so etwa rohrfreie Zonen oder den Randbereich des Rohrbodens am Übergang zum Reaktormantel 10, beschränken.

Entsprechendes gilt auch für die gaseintrittsseitig auf den Rohrboden aufgebrachte Wärmeisolationsschicht 50 nach Fig. 4. Sie unterscheidet sich von der Wärmeisolationsschicht 46 nach den Figuren 1 und 2 indessen dadurch, daß in ihr Durchbrechungen, wie z.B. 52, entsprechend und fluchtend mit dem Innenquerschnitt der einzelnen Rohre, wie z.B. 16, ausgespart sein müssen, um dem Prozeßgas ungehinderten Zutritt zu den Rohren zu gewähren.

Wie in Fig. 4 angedeutet kann die Gaseintrittshaube 12 zusätzlich zu der Isolierung des gaseintrittsseitigen Rohrbodens eine

Füllung 54 aus keramischem Material, einem Drahtmattengeflecht oder dergl. enthalten. Ferner kann die Gaseintrittshaube 12 aus Edelstahl hergestellt sein oder innenseitig eine reaktionshemmende Beschichtung tragen. Schließlich kann auch noch durch Politur ihrer Innenflächen die Anlagerung von verblasenem Katalysatorstaub aus den Rohren erschwert werden.

Fig. 5 zeigt, insofern ähnlich den Figuren 1 und 2, einen wärmeträgerseitig isolierten Rohrboden, 60. In diesem Fall allerdings besteht die Wärmeisolationsschicht aus einer gegenüber der Reaktionszone 62 des Reaktors abgeschlossenen Kammer 64. Die Kammer 64 besitzt übereinanderliegende Ein- und Auslässe 66 bzw. 68 für ein Kühlmittel sowie ein dazwischenliegendes Leitblech 70, welches das Kühlmittel zwingt, an dem Rohrboden 60 wie auch einer Trennscheibe 72 entlangzustömen, welche die Kammer 64 von der Reaktionszone 62 trennt. Durch die Trennscheibe 72 sind die Rohre, wie z.B. 16, eingedichtet hindurchgeführt.

Das betreffende Kühlmittel kann aus dem gleichen oder einem anderen Medium bestehen wie der Wärmeträger in der Reaktionszone 62. Im ersteren Fall kann es an geeigneter Stelle nach der Rückkühlung von dem Wärmeträgerkreislauf nach Fig. 1 abzweigend werden. Auch spielen etwaige kleinere Undichtigkeiten an der Rohrdurchführung durch die Trennscheibe 72 keine entscheidende Rolle. Dennoch sollte in der Kammer 64 in bezug auf die Reaktionszone 62 etwa der gleiche Druck aufrechterhalten werden, um Leckströmungen an der Rohrdurchführung gering zu halten.

Indessen kann die Kammer 64 auch evakuiert oder mit einem unbeweglichen festen, flüssigen oder gasförmigen Wärmeisolationsmittel, wie z.B. Sand, Öl oder Luft gefüllt sein. Dabei kann ein

flüssiges oder gasförmiges Wärmeisolationmittel durch eine eingebaute Zellenstruktur an einer Zirkulation gehindert sein. Auf jeden Fall sollte das in der Kammer 64 verwendete Kühl- oder Wärmeisolationmittel ein solches sein, welches mit dem in der Reaktionszone 62 auftretenden Wärmeträger nicht zu reagieren vermag.

Derartige Kammern sind prinzipiell auf der Gaseintrittsseite ebenso wie auf der Wärmeträgerseite des gaseintrittsseitigen Rohrbodens anwendbar und können sich u.U. auch wiederum nur über Teilbereiche des Rohrbodens, etwa rohrfreie Zonen oder den Randbereich, erstrecken.

Nach Fig. 6 besteht eine wärmeträgerseitige Wärmeisolationsschicht 80 an einem gaseintrittsseitigen Rohrboden 82 lediglich aus einer durch Einbauten 84 in Form einer Waben- oder konzentrischen Ringstruktur strömungsberuhigten Zone des Wärmeträgers, der damit dort infolge des vom eintretenden Prozeßgas gekühlten Rohrbodens, gleichgültig ob der Reaktor im Gleichstrom oder Gegenstrom arbeitet, in der Regel eine geringere Temperatur annehmen wird als in der eigentlichen Reaktionszone. Dies gilt um so mehr, wenn die Kontaktrohre nicht bis zum Rohrboden hin mit Katalysator gefüllt werden.

Die Einbauten 84 können, müssen jedoch nicht unbedingt, wie in Fig. 6 gestrichelt angedeutet, durch eine Platte 86 abgedeckt sein, und ebenso können sie zum Rohrboden 82 hin abgedichtet sein.

Die Erfindung ist prinzipiell gleichermaßen anwendbar für exotherm wie endotherm arbeitende Reaktoren, auch Mehrstufenreakto-

ren wie etwa in DE 22 01 528 C, Fig. 5, gezeigt, und zwar unabhängig davon, ob sich der Gaseintritt oberseitig oder unterseitig befindet und der Wärmeträger im Gleich- oder Gegenstrom durch den Reaktor hindurchtritt.

Generell gilt, daß die am gaseintrittsseitigen Rohrboden auftretenden Rohrenden, falls wünschenswert, ganz oder teilweise von Katalysatormasse freigehalten oder mit einem inerten Material oder einer Mischung eines solchen mit Katalysatormaterial gefüllt sein können, um die Reaktionstemperatur in der Nähe des Rohrbodens zu begrenzen.

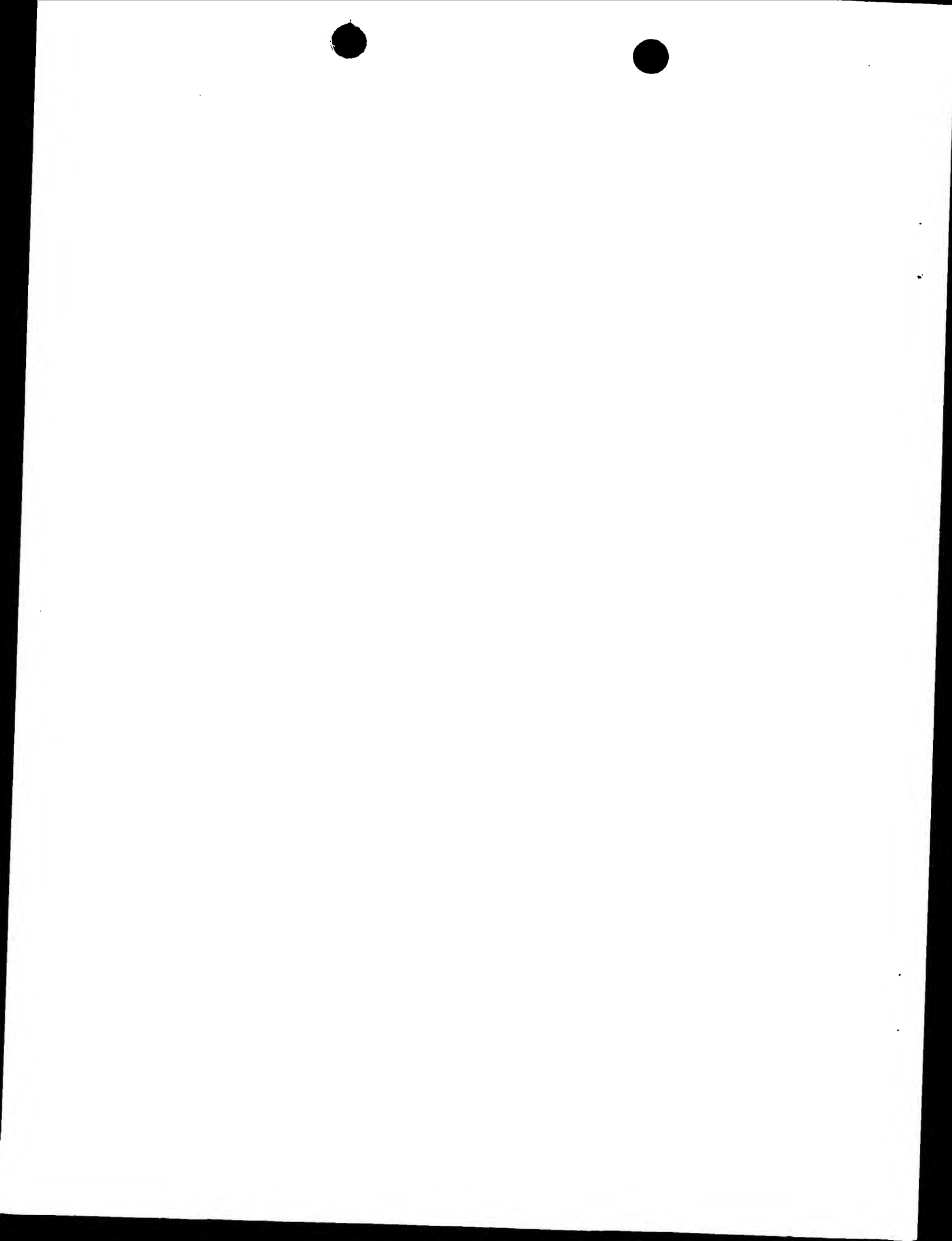
Patentansprüche

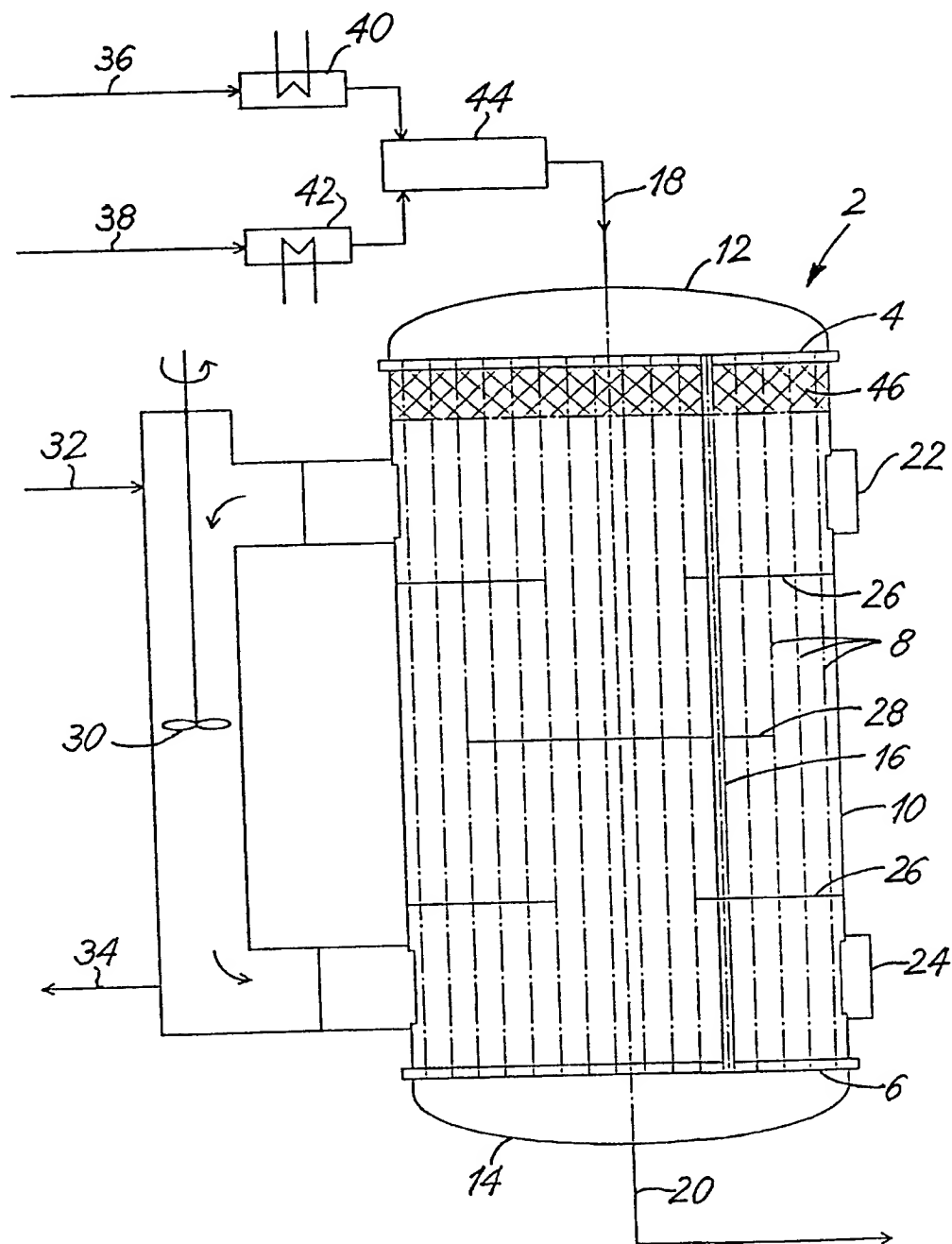
1. Röhrenreaktor (2) für katalytische Reaktionen, mit einem innerhalb eines Reaktormantels (10) von einem Wärmeträger umspülten Kontaktröhrbündel (8), das sich zwischen einem reaktionsgaseintrittsseitigen Rohrboden (2; 60; 82) und einem reaktionsgasaustrittsseitigen Rohrboden (6) erstreckt, mit die beiden Rohrböden stirnseitig überspannenden Gaseintritts- bzw. Gasaustrittshauben (12, 14) und mit reaktionshemmenden Mitteln im Bereich des reaktionsgaseintrittsseitigen Rohrbodens, dadurch *gekennzeichnet*, daß die reaktionshemmenden Mittel ganz oder teilweise aus einer die Rohrquerschnitte aussparenden Wärmeisolationsschicht (46; 50; 64; 80) auf zumindest einer der beiden Seiten des betreffenden Rohrbodens (4; 60; 82) bestehen.
2. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 1, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Wärmeisolationsschicht (46; 64; 80) zumindest vorwiegend wärmeträgerseitig an dem Rohrboden (4; 60; 82) angeordnet ist.
3. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 1, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Wärmeisolationsschicht (50) zumindest vorwiegend reaktionsgaseintrittsseitig an dem Rohrboden (4) angeordnet ist.
4. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Wärmeisolationsschicht (46; 50) eine örtlich variierende Dicke aufweist.

5. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Wärmeisolationsschicht (46; 50) eine örtlich variierende Zusammensetzung aufweist.
6. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch **gekennzeichnet**, daß sich die Wärmeisolationsschicht (46; 50; 64; 80) auf Teilbereiche, wie z.B. rohrfreie Stellen oder den Randbereich des gasintrittsseitigen Rohrbodens (2; 60; 82) beschränkt.
7. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Wärmeisolationsschicht (46; 50) zumindest teilweise aus Keramik, wie z.B. einer Glasfritte, oder einem entsprechend wärmefesten Feststoff besteht.
8. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Wärmeisolationsschicht zumindest teilweise aus einer Kammer (64) besteht.
9. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 8, dadurch **gekennzeichnet**, daß die Kammer (64) ein festes, flüssiges oder gasförmiges Wärmeisulationsmaterial enthält.
10. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 9, dadurch **gekennzeichnet**, daß ein flüssiges oder gasförmiges Wärmeisulationsmaterial in der Kammer (64) durch in die Kammer eingebaute Strukturen an einer Zirkulation gehindert ist.

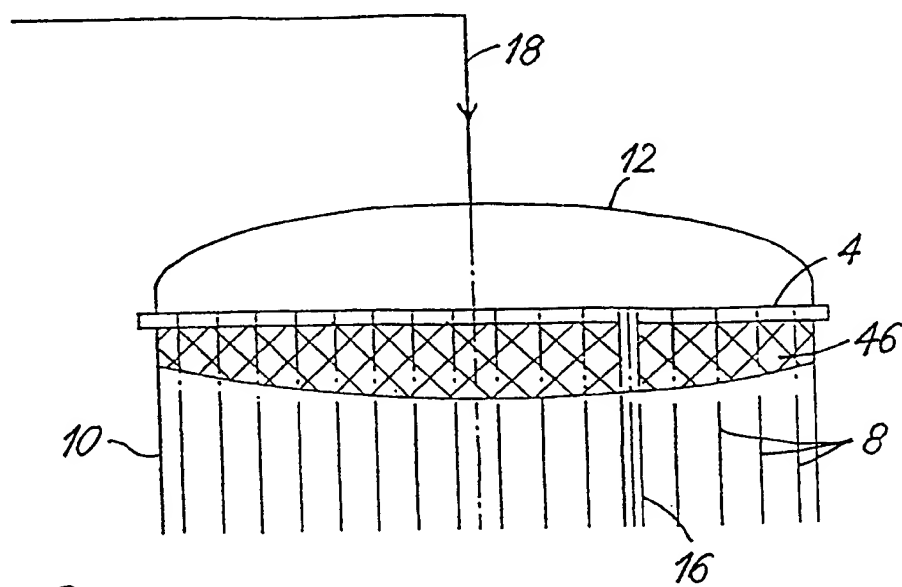
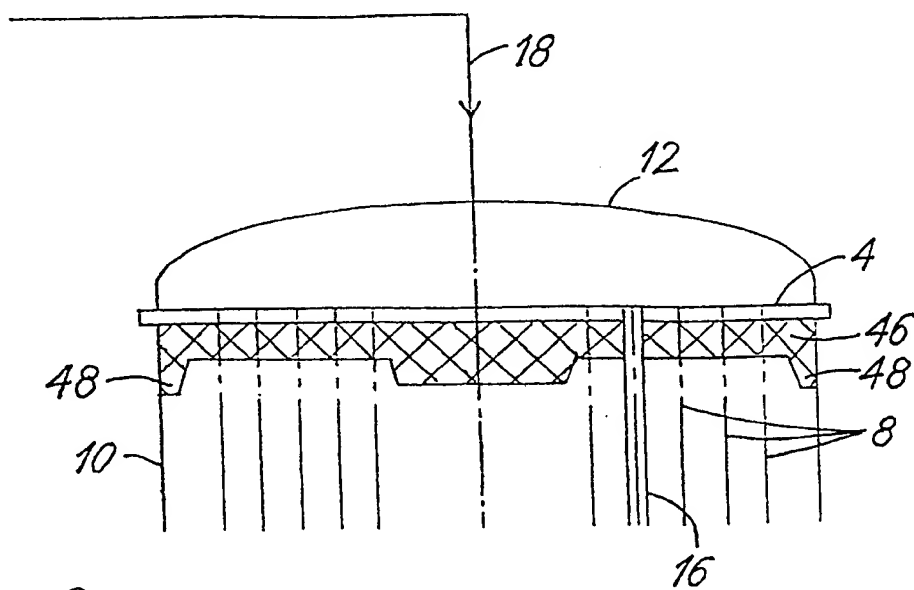
11. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 9, dadurch *gekennzeichnet*, daß ein flüssiges oder gasförmiges Kühlmittel durch die Kammer (64) hindurch umgewälzt wird.
12. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 11, dadurch *gekennzeichnet*, daß als flüssiges Kühlmittel ein Teilstrom des das Kontaktrohrbündel (8) umspülenden Wärmeträgers Verwendung findet.
13. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 8, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Kammer (64) evakuiert ist.
14. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Wärmeisolationsschicht (80) zumindest teilweise aus einer durch Einbauten (84), wie z.B. einer Waben- oder konzentrischen Ringstruktur, strömungsberuhigten Zone des Wärmeträgers besteht.
15. Röhrenreaktor (2) nach Anspruch 14, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Einbauten (84) zumindest auf ihrer dem Rohrboden (82) abgekehrten Seite abgedeckt, vorzugsweise abgedichtet, sind.
16. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Gaseintrittshaube (12) aus Edelstahl besteht.
17. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Innenwand der Gaseintrittshaube (12) poliert ist oder eine reaktionshemmende Beschichtung aufweist.

18. Röhrenreaktor (2) nach einem der vorhergehenden Ansprüche, dadurch *gekennzeichnet*, daß die Gaseintrittshaube (12) eine gasdurchlässige Füllung (54) aus Keramikmaterial, Drahtmattengeflecht oder dergl. enthält.

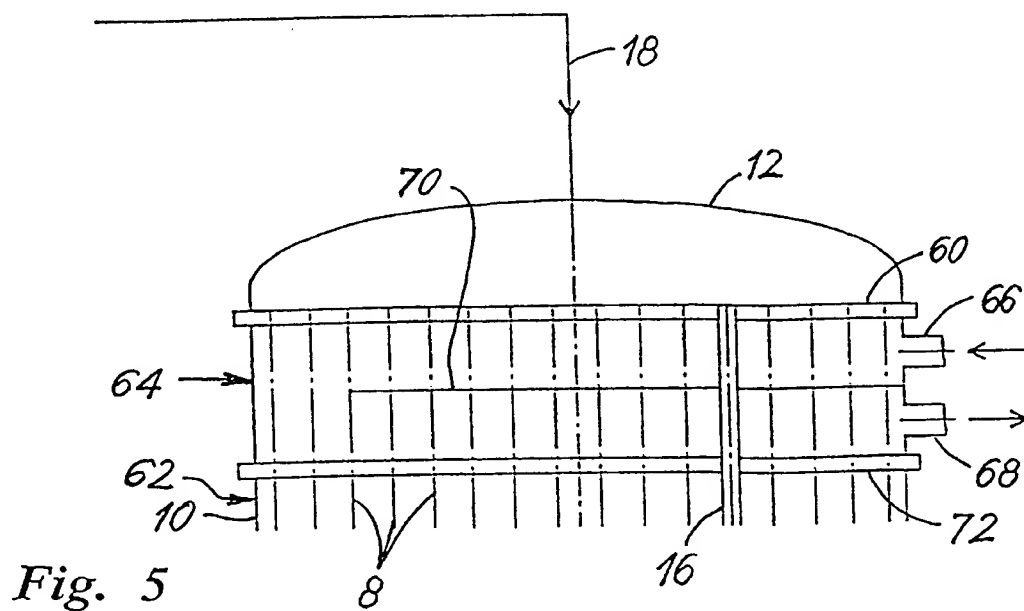
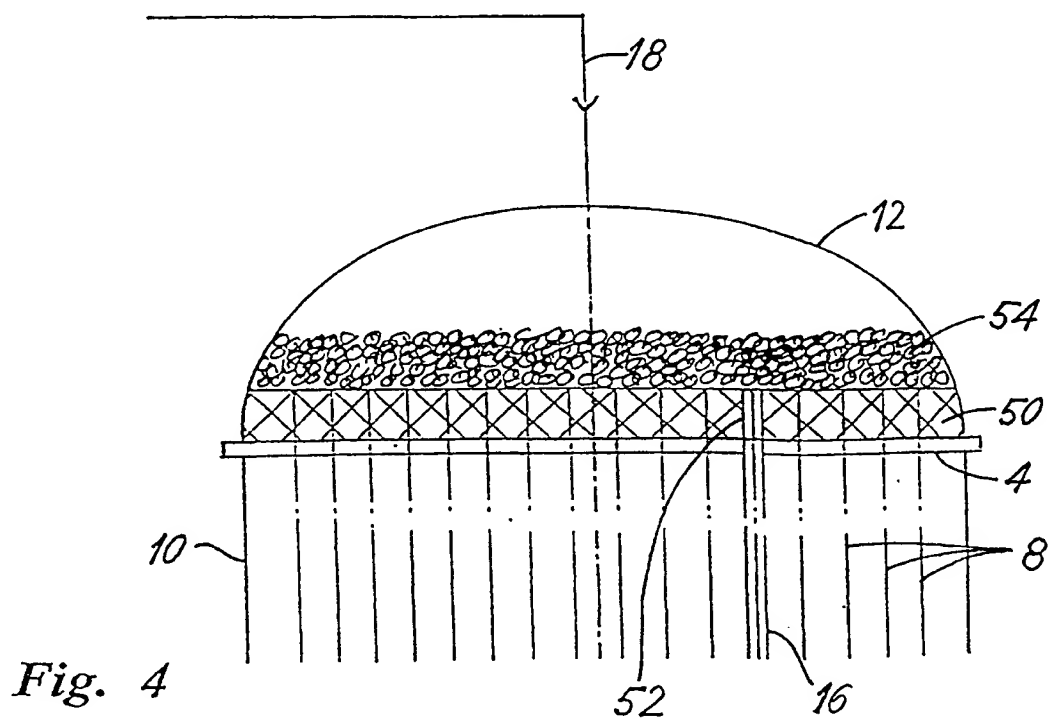


*Fig. 1*

2/4

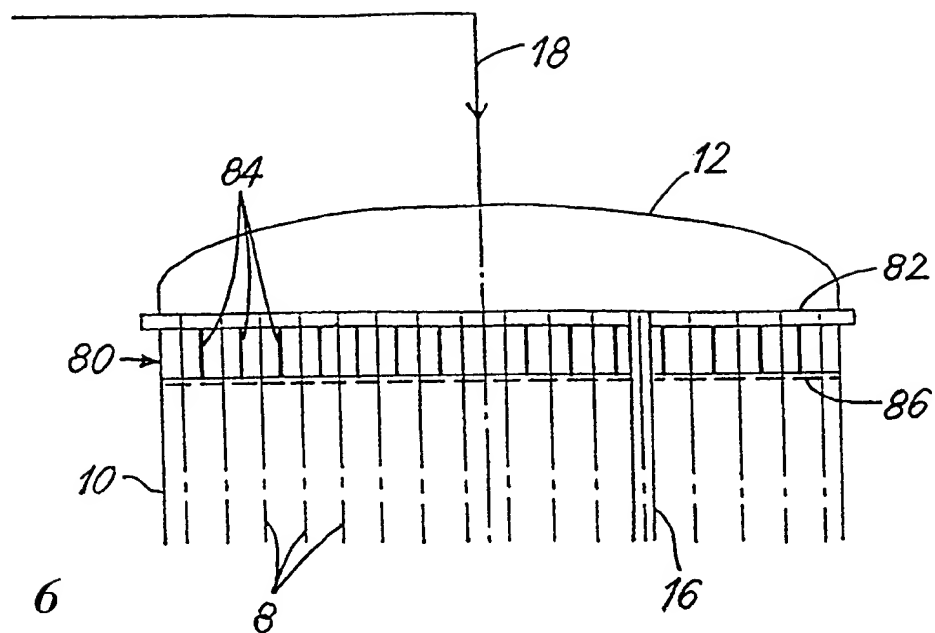
*Fig. 2**Fig. 3*

3/4





4/4

*Fig. 6*



BAUER 214-KFM:jg
D-10826

IN THE UNITED STATES PATENT AND TRADEMARK OFFICE

Applicant : JOHANN ORTNER and JOHANN SEEMANN
Serial No.: 09/622,301
Filed : August 16, 2000
For : TUBULAR REACTOR FOR CATALYTIC REACTIONS

October 25, 2000

Hon. Commissioner of Patents
& Trademarks
Washington, DC 20231

Attn.: Ms. Paulette Kidwell, Paralegal - 703 305-3230

Sir:

TRANSMITTAL OF ENGLISH TRANSLATION

Attached herewith is a copy of applicants' translation
of the original International Application No.
PCT/EP99/01036.

Please charge the surcharge in the amount of \$130 (for
late filing of translation) to our Deposit Account No. 50-
0427.

Respectfully submitted,

By

Karl F. Milde, Jr.
Reg. No. 24,822

MILDE, HOFFBERG & MACKLIN, LLP
10 Bank Street - Suite 460
White Plains, NY 10606

(914) 949-3100

I hereby certify that this correspondence,
16 pages, is being facsimile transmitted
to The Commissioner of Patents and Trademarks
Washington, D.C. 20231 on the date shown below.

By

10-25-00
J. Milde

534 Rec'd PCT/PTO 16 AUG 2000

TUBULAR REACTOR FOR CATALYTIC GAS PHASE REACTIONS

The invention relates to a tubular reactor for catalytic gas phase reactions according to the concept of patent claim 1.

Usually, such reactors exhibit a reactor jacket containing a heat carrier that circulates around a contact tube bundle, which extends between a tube plate at the gas inlet side and a tube plate at the gas outlet side, as well as gas inlet and gas outlet hoods spanning the face sides of the two tube plates. The process gas, usually a gas mixture, that is to be brought to reaction enters a contact tube that contains a catalytic mass via the gas inlet hood and after passing said contact tube exits the reactor via the gas outlet hood. The gas inlet may be located either on the top or bottom side, and as a whole the heat carrier may pass through the reactor in parallel flow or counter flow with regard to the process gas flow. The reactor can also have a multi-step design as shown, for example, in the German Patent No. DE 22 01 528 C, Fig. 5.

Usually, the process gas stream is comprised of two or more material streams that are combined shortly before entering the reactor, that is, its gas inlet hood. In this course, secondary reactions that are harmful to the process or even ignition and deflagration may occur, especially in the immediate area surrounding the generally relatively hot tube plate. Examples of

such reaction processes are the production of maleic acid anhydride, phthalic acid anhydride, acrolein and acrylic acid.

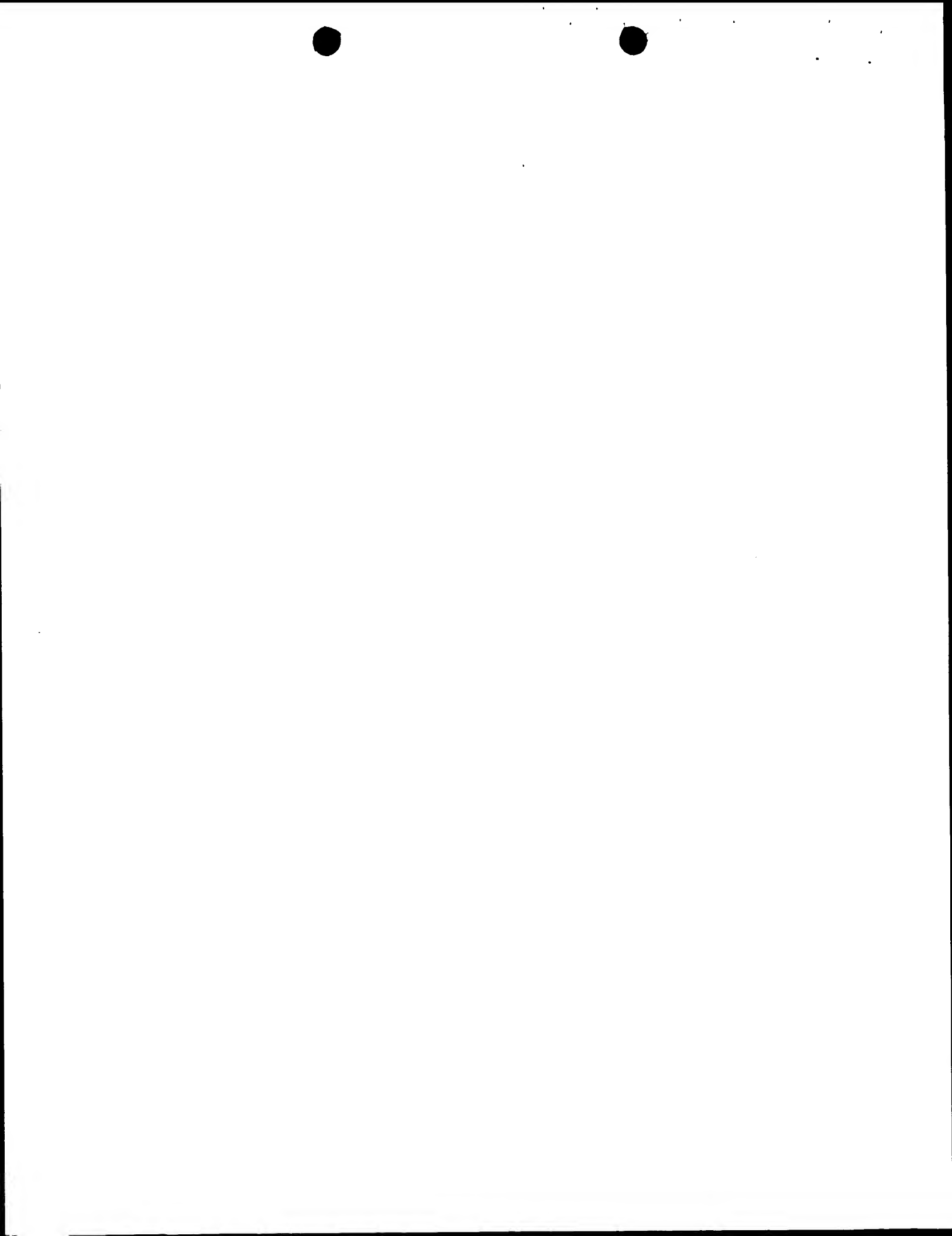
Fillers of ceramic materials or a wire mat mesh have been introduced into the gas inlet hood in an effort to prevent such secondary reactions. Other attempts involved insulating the tube endings by using cylinders, because the highest temperatures occur generally at the tube plate on the gas inlet side in the area of the tube ending. However, in the end, none of these measures proved effective or at least dependable for preventing the above mentioned secondary reactions.

The U.S. Patent No. 2,986,454 A discloses the use of so-called isolation tubes in series prior to the contact tube ends on the reaction gas inlet side, where said isolation tubes are surrounded by a cooling chamber with circulating air. With this arrangement, the entering reaction gas mixture is kept away from hot parts prior to the start of the intended reaction. Although the isolation tubes are connected in series to the following contact tubes in a sealed manner, the air that passes through the cooling chamber is subsequently added to the process gas. It is understood that such a process is limited to certain applications. In addition, the isolation tubes which extend in a pivotal manner into the contact tubes for the purpose of compensating for differing heat expansions form undesirable contractions for adding and removing the catalyst. This applies

in particular to reactors with numerous contact tubes, for example, more than 10,000, and a large diameter, for example, 7000 mm, where temperature-related offsets of about 10 mm in the edge zone can be expected.

Furthermore, it is known from the U.K. Patent No. 776 416 A to provide a poured and thereafter hardened heat insulation layer at the tube plates on the side of the heat carrier to avoid crystallization in a tubular heat exchanger for cooling or heating of saturated solutions, where said heat exchanger also exhibits a heat carrier that circulates around a tube bundle that stretches between two tube plates. However, such materials, such as artificial resin that must be sufficiently fluid during pouring to distribute itself around the tubes in a desired manner exhibit only a limited temperature resistance that makes them unsuitable for the application of molten salts, for example, as a heat carrier.

Finally, it is known from the U.S. Patent No. 4,127,389, which is the basis for the concept of claim 1, to design the gas inlet and gas outlet hoods together with the associated tube plates as individual chambers within the reactor housing where said chambers are essentially surrounded on all sides by stream-calmed heat carriers. For this purpose, an unsealed plate penetrated by the contact tubes is located at a distance and parallel to each tube plate, where the one on the gas inlet side carries an



insulation layer made of cast refractory material. This is a relatively narrow endothermic high-temperature reactor, whose heat carrier may exhibit a temperature of between 1075 and 870 1C and is, therefore, definitely in a gaseous state. Furthermore, the pressure difference between process gas and the heat carrier may be just about 7 bar at the most. Accordingly, the tube plates together with their suspensions can be made relatively light in weight. If they had to carry the liquid heat carrier in addition to the weight of the tubes, then the usual immediate anchoring at the reactor jacket would be unavoidable. This applies particularly for reactor designs with a comparatively great diameter and many tubes.

Consequently, it is an objective of the present invention to provide a tubular reactor of the type described above -- that is, with a heat insulation zone that borders on the heat carrier side of the tube plate on the gas inlet side -- such that it can be operated with essentially any common diameter, any common number of tubes, any common pressure difference and any conceivable heat carrier including, for example, a salt bath.

This objective is essentially achieved through the characteristic features of claim 1 subject to the invention. The subclaims offer additional advantageous design options.

The respective heat insulation zone at the tube plate on the gas inlet side in the shape of a chamber or formed by stream-calming structures has the effect that the gas plate on the inlet side of the reaction gas and the surrounding area of the gas inlet hood is kept comparatively cool, without the need for any limitations in the process, the reactor design or the heat exchanger material to be used. Through a respective design of the heat insulation zone, the temperature gradient may be kept low regardless of the comparatively cold tube plate that connects to the reactor jacket as is desirable for keeping the temperature stress low.

Some preferred exemplary embodiments of the respective tubular reactor are described in greater detail below based on the drawings, wherein

Fig. 1 shows schematically a longitudinal section through a tubular reactor according to the invention in a first embodiment together with connecting elements,

Fig. 2 shows schematically a longitudinal section through an end section at the gas inlet side of such a tubular reactor, in a variation of the embodiment of Fig. 1,

Fig. 3 shows schematically a longitudinal section through an end section at the gas inlet side of a tubular reactor as in Fig. 1, in a different variation of the embodiment of Fig. 1,

Fig. 4 shows schematically a longitudinal section through an end section at the gas inlet side of a tubular reactor according to the invention in a specific embodiment, and

Fig. 5 shows schematically a longitudinal section through an end section at the gas inlet side of a tubular reactor according to the invention in another specific embodiment.

Easily comparable elements that occur in the individual Figures were given the same reference number.

The tubular reactor 2 shown in Fig. 1 includes in typical manner a vertical tube bundle 8 that stretches inside a cylindrical reactor jacket 10 from a tube plate 4 at the gas inlet side to a tube plate 6 at the gas outlet side with the two tube plates 4 and 6 being attached to said cylindrical jacket in a sealed manner. The tube plate 4 at the gas inlet side is spanned by a gas inlet hood 12 and the tube plate 6 at the gas outlet side is spanned by a gas outlet hood 14, with both hoods being attached to the respective tube plate in a sealed manner. The individual tubes, e.g., 16, of the tube bundle 8 contain a gas-permeable catalytic mass. The reaction or process gas that is to be brought to a reaction is fed into the gas inlet hood 12 via a gas supply line 18, while the process gas that has passed through the tube bundle 8 and that has gone through the reaction process is

removed from the gas outlet hood 14 via a gas removal line 20. Ring channels 22 and 24 surrounding the reactor jacket 10 close to the two tube plates 4 and 6 make possible the supply and removal of a heat carrier, which is in a liquid state at least when the reactor is in operation, into or from the reactor jacket 10, where said heat carrier circulates around the individual tubes, e.g., 16, of the tube bundle 8 to remove the reaction heat. The flow of the heat carrier can be directed in a desired manner or, if required, distributed across the cross section of the reactor jacket as shown by using two types of guide plates 26 and 28. The heat carrier that is removed from the reactor jacket 10 via the ring channel 22 is returned to the reactor jacket 10 via the ring channel 24 by using a pump 30 whereby a controllable partial flow is guided through a cooling device (not shown here) via branch lines 32 and 34.

The process gas supplied to the reactor via the gas supply line 18 is (in this example) comprised of two partial streams 36 and 38 that are preheated using the heat exchangers 40 and 42, mixed in a mixing device 44 and then supplied to the gas inlet hood 12 via the gas supply line 18 as the aforementioned process gas.

In some cases, the supplied process gas is by itself already very reactive, especially if it has had contact with hot surfaces, with the tube plate 4 generally being the hottest surface within the space under the gas inlet hood 12. For this reason, the

invention provides a heat insulation zone 46 on the heat carrier side for the tube plate 4 against the heat carrier that circulates around the tube bundle 8 and in this manner to keep the tube plate comparatively cool together with the neighboring parts of the gas inlet hood 12.

In Figures 1, 2 and 3, the heat insulation layer 46 is shown only schematically. While it has a constant thickness according to Fig. 1, the thickness increases toward the center according to Fig. 2 under the assumption that the tube plate usually has the highest temperature in that area.

It is understood that for other temperature distributions, the profile of the heat insulation layer 46 may have a different shape. Thus, the heat insulation layer 46 can, for example, as shown in Fig. 3, include a collar 48 at the edge of the tube plate 4 along the interior wall of the reactor jacket 10 in order to keep the temperature gradient at the connection of the reactor jacket to the cooler tube plate, and thus the temperature stress, low. As can be seen from Fig. 3 as well, the thickness of the heat insulation layer 46 can also be different - generally greater - in the tube-free zones of the reactor than in the tube zones in order to accommodate for the normally greater heat of the tube plate in these zones. It is furthermore conceivable to vary the structure of the heat insulation zone instead of the thickness, or vary the thickness of the heat insulation zone

alone. Furthermore, the heat insulation layer 46 can be limited to partial areas of the tube plate 4 -- for example, the tube-free zone or the edge area of the tube plate at the transition to the reactor jacket 10.

Fig. 4 shows a practical embodiment of the heat insulation zone 46 as is shown only schematically in Fig. 1. Here, the heat insulation zone 46 consists of a chamber 64 that is closed against the reaction zone 62 of the reactor. The chamber 64 exhibits inlets and outlets 66 and 68 one above the other for a cooling medium as well as a guide plate 70 between the inlet and outlet, that forces the cooling medium to flow along the tube plate 4, as well as the separator disk 72 that separates the chamber 64 from the reaction zone 62. The pipes, such as 16, for example, penetrate the separator disk 72 in a sealed manner.

The respective cooling medium can be made of the same or a different medium as the heat carrier in the reaction zone 62. In the first case, it may be diverted at a suitable location after its re-cooling from the heat carrier circulation according to Fig. 1. Also, possible small leakages at the tube penetrations through the separator disk 72 are not crucial in this case. Still, with regard to the reaction zone 62, about the same pressure should be maintained in the chamber 64 in order to keep leakage streams at the tube penetrations to a minimum.

The chamber 64 can also be evacuated or filled with an immovable solid, liquid or gaseous heat insulation medium, such as sand, oil or air, for example. In this regard, a liquid or gaseous heat insulation medium can be prevented from circulating through an installed cell structure. In any case, the cooling or heat insulation medium used in the chamber 64 should be one that is incapable of reacting with the heat carrier used in the reaction chamber 62.

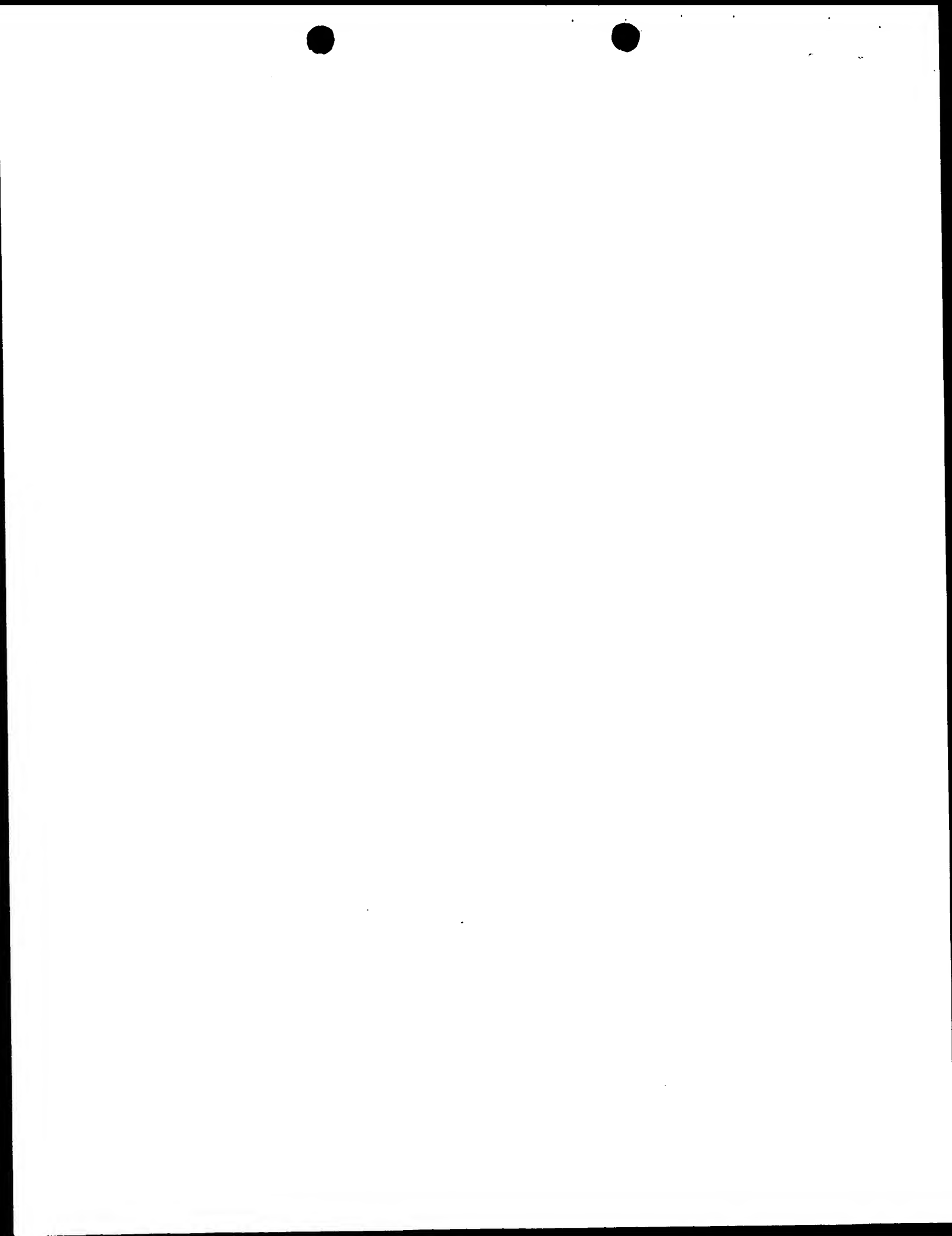
According to Fig. 5, the heat insulation layer 46 simply consists of a stream-calming zone of the heat carrier that is the result of built-in components 84 in the shape of honeycombs or concentric ring structures, where the heat carrier will assume a lower temperature than in the actual reaction zone due to the fact that the tube plate 4 is cooled by the incoming process gas, regardless whether the reactor operates in parallel or counter flow mode. This applies even more when the contact tubes are not filled with catalyst all the way to the tube plate.

The components 84 can, but do not necessarily have to be covered by a plate 86, as indicated in Fig. 5 by a dashed line, and can also be sealed towards the tube plate 42.

Basically, the present invention can be applied to exothermally as well as endothermically operating reactors or multi-step reactors, such as the one shown in Fig. 5 of the German Patent

No. DE 22 01 528 C, regardless whether the gas inlet is on the top or bottom side and the heat carrier passes through the reactor in a parallel flow or counter flow mode.

It generally applies that the tube ends at the tube plate on the gas inlet side can be entirely or in part kept free of catalytic mass or can be filled with an inert material or a mixture of such a catalytic material in order to limit the reaction temperature close to the tube plate.



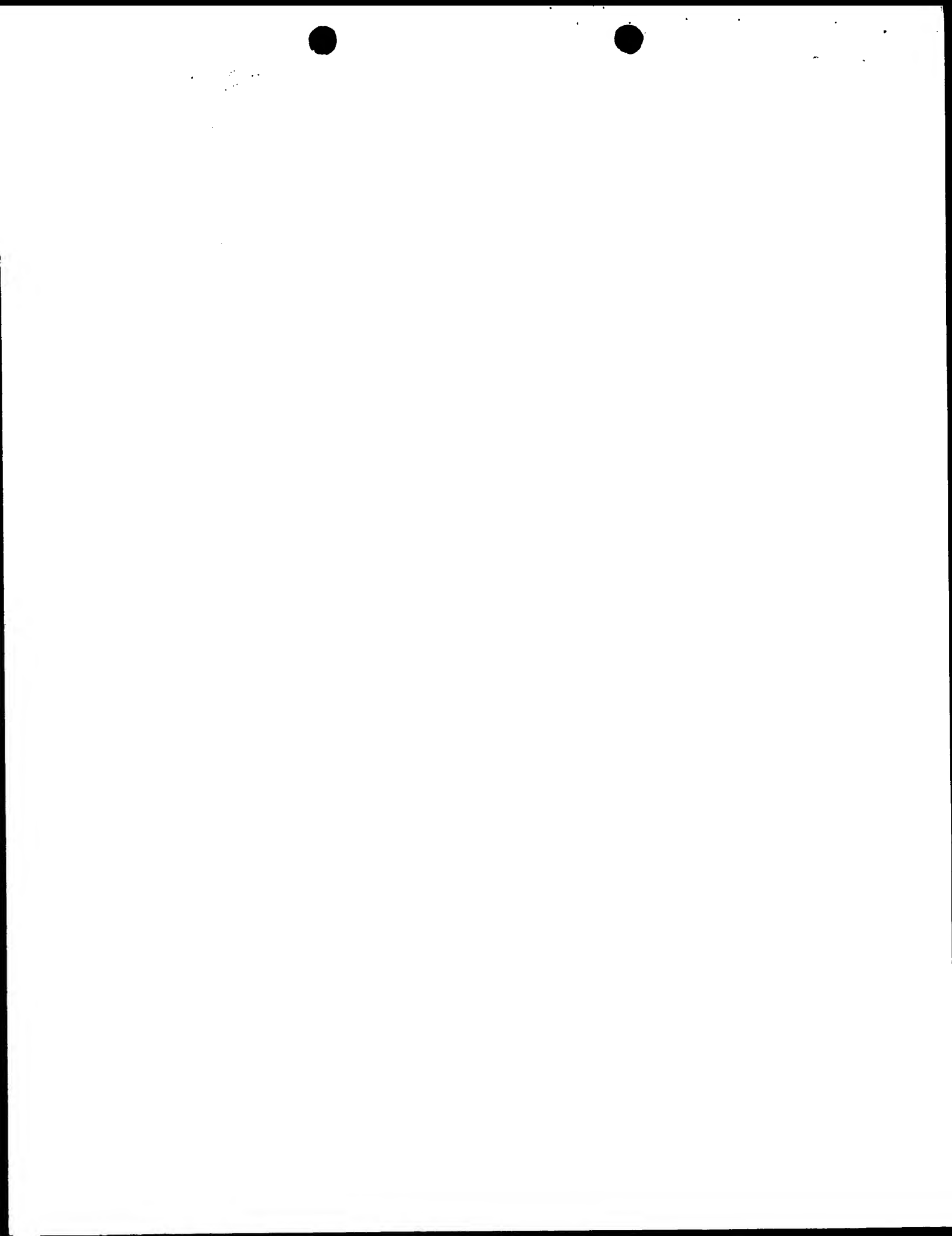
1. A tubular reactor (2) for catalytic gas phase reactions with a heat carrier that circulates around a contact tube bundle (8) inside a reactor jacket (10), the tube bundle extending between a tube plate (4) at the gas inlet side and a tube plate (6) at the reaction gas outlet side beginning or ending there and sealed to it,

with gas inlet and gas outlet hoods (12, 14) spanning the face sides of the two tube plates, and with a heat insulation zone (46) that borders on the heat carrier side on the tube plate at the gas inlet side,

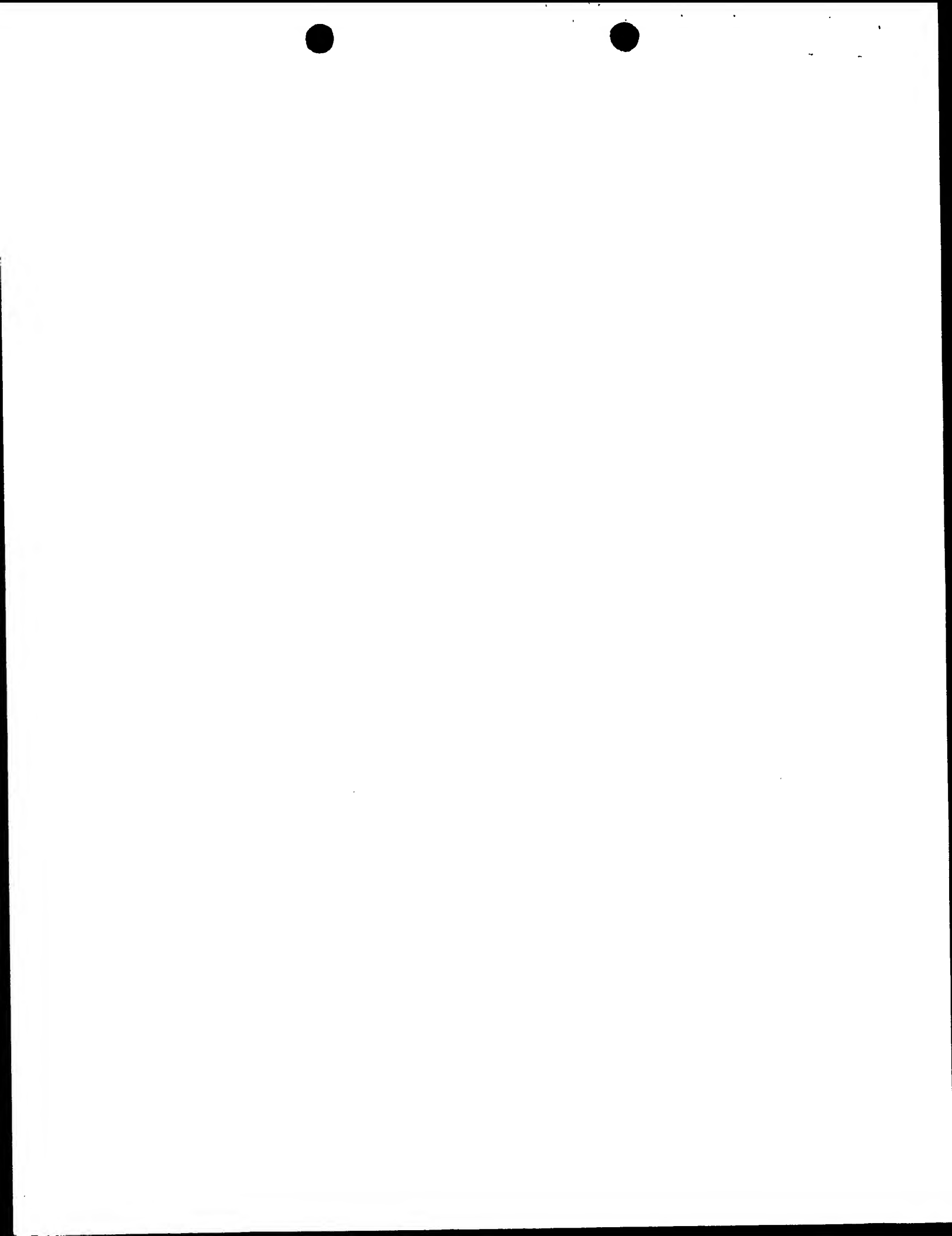
characterized in that

the two tube plates (4, 6) are anchored in an essentially known manner at their edges to the reactor jacket (10) in a sealed manner, and that the heat insulation zone (46) includes a chamber (64) containing a solid, liquid or gaseous heat insulation material or components (84) that are stream-calming with respect to the heat carrier.

2. Tubular reactor (2) as set forth in claim 1, *characterized in that* the heat insulation zone (46) exhibits a locally varying thickness.



3. Tubular reactor (2) as set forth in claim 1 or 2, *characterized in that* the heat insulation zone (46) exhibits a locally varying structure.
4. Tubular reactor (2) as set forth in one of the previous claims, *characterized in that* the heat insulation zone (46) is limited to partial zones, such as tube-free areas or the edge area of the tube plate on the gas inlet side (4), for example.
5. Tubular reactor (2) as set forth in one of the previous claims with a heat insulation zone (46) in the form of a chamber (64), *characterized in that* a liquid or gaseous heat insulation material in the chamber is prevented from circulating by structures that are installed in the chamber.
6. Tubular reactor (2) as set forth in one of the claims 1 through 4 with a heat insulation zone (46) in the form of a chamber (64), *characterized in that* a liquid or gaseous heat insulation material is circulated throughout the chamber as cooling medium.
7. Tubular reactor (2) as set forth in claim 6, *characterized in that* a partial stream of the heat carrier circulating around the contact tube bundle (8) finds use as a liquid or gaseous heat insulation material.



8. Tubular reactor (2) as set forth in one of the claims 1 through 4 with a heat insulation zone (46) formed by built-in components (84), *characterized in that* the components exhibit honeycomb or concentric ring structures.

9. Tubular reactor (2) as set forth in claim 8, *characterized in that* the components (84) are covered, at least on the side opposite the tube plate (4) on the gas inlet side, and preferably sealed.

